

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

BERICHTIGTE FASSUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
31. Januar 2002 (31.01.2002)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 02/08195 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: C07D 231/16,
A01N 43/56, C07D 401/12, C07C 251/48, 251/52, C07D
213/30, C07F 5/02, C07C 223/06, 225/22

Kloster 47, 42799 Leichlingen (DE). JAETSCH, Thomas
[DE/DE]; Eintrachtstrasse 105, 50668 Köln (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP01/07990

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-
SELLSCHAFT; 51368 Leverkusen (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:
11. Juli 2001 (11.07.2001)

(81) Bestimmungsstaaten (*national*): AE, AG, AL, AM, AT,
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,
CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE,
GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ,
LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN,
MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI,
SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU,
ZA, ZW.

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
100 35 860.8 24. Juli 2000 (24.07.2000) DE
101 22 097.9 7. Mai 2001 (07.05.2001) DE

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): ARIPO-Patent (GH,
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW),
curasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ,
TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK,
ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR),
OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML,
MR, NE, SN, TD, TG).

(71) Anmelder (*für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme
von US*): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];
51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (*nur für US*): ELBE, Hans-Lud-
wig [DE/DE]; Dasnöckel 59, 42329 Wuppertal (DE).
RIECK, Heiko [DE/DE]; Gudrunstrasse 4, 40764 Lan-
genfeld (DE). DUNKEL, Ralf [DE/DE]; Krischerstrasse
22, 40789 Monheim (DE). WACHENDORFF-NEU-
MANN, Ulrike [DE/DE]; Oberer Markweg 85, 56566
Neuwied (DE). MAULER-MACHNIK, Astrid [DE/DE];
Neuenkamper Weg 48, 42799 Leichlingen (DE). KUCK,
Karl-Heinz [DE/DE]; Pastor-Löh-Strasse 30a, 40764
Langenfeld (DE). KUGLER, Martin [DE/DE]; Am

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

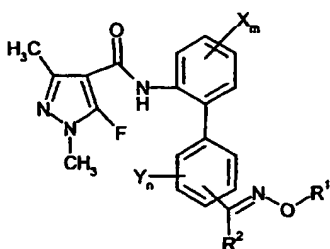
(48) Datum der Veröffentlichung dieser berichtigten
Fassung: 4. April 2002

(15) Informationen zur Berichtigung:
siehe PCT Gazette Nr. 14/2002 vom 4. April 2002, Section
II

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: PYRAZOLYL BIPHENYL CARBOXAMIDES AND THE USE THEREOF FOR CONTROLLING UNDESIRE D MI-
CROORGANISMS

(54) Bezeichnung: PYRAZOLYLBIPHENYLCARBOXAMIDE UND DEREN VERWENDUNG ZUR BEKÄMPFUNG UNER-
WÜNSCHTER MIKROORGANISMEN



(I)

(57) Abstract: The invention relates to novel pyrazolyl biphenyl carbox-
amides of formula (I) wherein R₁, R₂, X, m, Y and n have the designated
meaning as cited in the description. The invention also relates to other
methods for producing said materials and the use thereof for controlling
undesired microorganisms, in addition to novel intermediate products and
the production thereof.

(57) Zusammenfassung: Neue Pyrazolylbiphenylcarboxamide der For-
mel (I), in welcher R₁, R₂, X, m, Y und n die in der Beschreibung an-
gegebenen Bedeutungen haben, mehrere Verfahren zur Herstellung dieser
Stoffe und deren Verwendung zur Bekämpfung unerwünschter Mikroor-
ganismen, sowie neue Zwischenprodukte und deren Herstellung.

WO 02/08195 A1



Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

- 2 -

X für Halogen, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₈-Alkoxy, C₁-C₆-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₈-Alkylthio, C₁-C₆-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₂-C₈-Alkenyloxy, C₂-C₈-Alkinyloxy, C₃-C₈-Cycloalkyl, C₁-C₈-Alkoxycarbonyl oder für $-C(R^2)=N-OR^1$ steht,

m für ganze Zahlen von 0 bis 3 steht, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht,

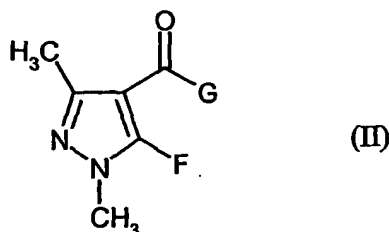
Y für Halogen, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₈-Alkoxy, C₁-C₆-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₈-Alkylthio, C₁-C₆-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₂-C₈-Alkenyloxy, C₂-C₈-Alkinyloxy, C₃-C₈-Cycloalkyl, C₁-C₈-Alkoxycarbonyl oder C₁-C₆-Alkoximino-C₁-C₆-alkyl steht und

n für ganze Zahlen von 0 bis 4 steht, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht,

gefunden.

Weiterhin wurde gefunden, dass man Pyrazolylbiphenylcarboxamide der Formel (I) erhält, indem man

a) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)

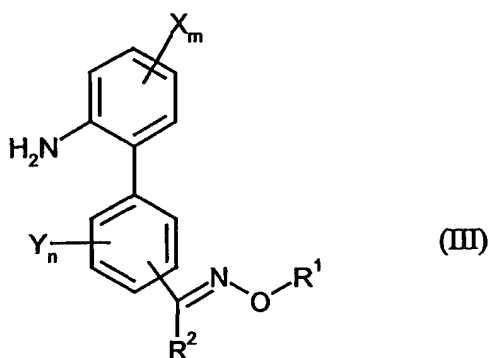


in welcher

- 3 -

G für Halogen, Hydroxy oder C₁-C₆-Alkoxy steht,

mit Anilin-Derivaten der Formel (III)



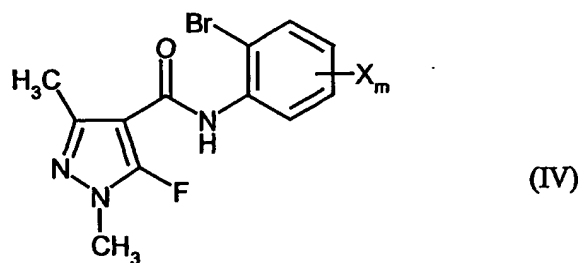
in welcher

R¹, R², X, m, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder

b) Carboxamid-Derivate der Formel (IV)

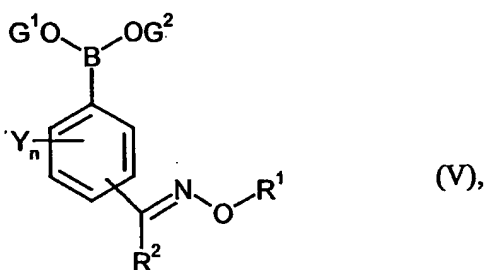


in welcher

- 4 -

X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)



5

in welcher

R¹, R², Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben und

10 G¹ und G² jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

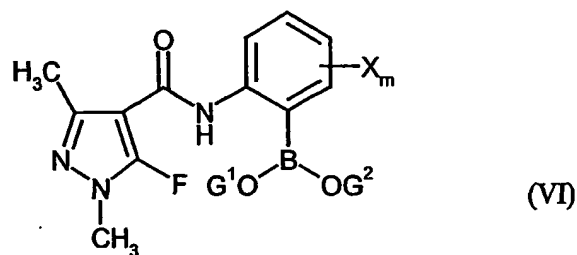
gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

15

oder

c) Carboxamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI)

20



in welcher

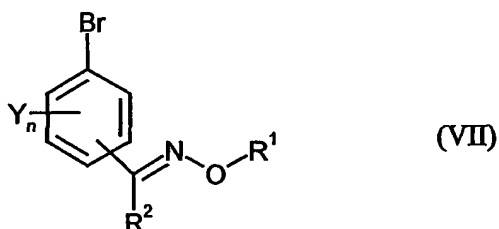
- 5 -

X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben und

G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

5

mit Phenylloxim-Derivaten der Formel (VII)



in welcher

10

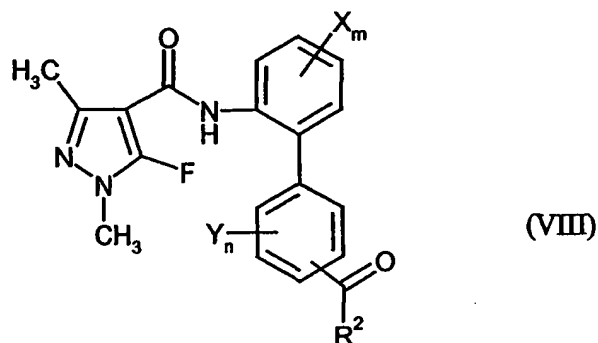
R^1 , R^2 , Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

15

oder

d) Biphenylacetyl-Derivate der Formel (VIII)



20

in welcher

- 6 -

R^2 , X, m, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben und

mit Alkoxyaminen der Formel (IX)



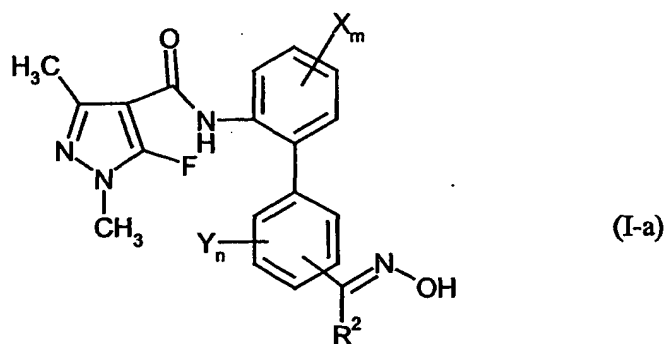
in welcher R^1 die oben angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in

Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder

e) Hydroxylamin-Derivate der Formel (I-a)



in welcher

R^2 , X, m, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Verbindungen der Formel (X)



in welcher

- 7 -

R^3 für C_1 - C_6 -Alkyl steht und

E für Chlor, Brom, Iod, Methansulfonyl oder p-Toluolsulfonyl steht,

5 oder

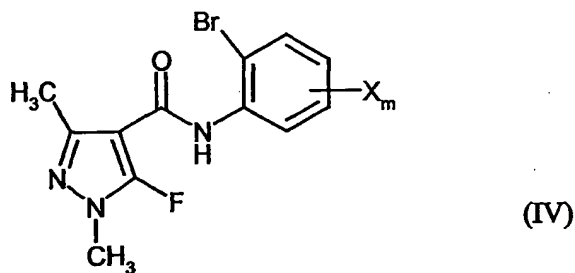
R^3 und E zusammen für (Di- C_1 - C_6 -alkyl)sulfat stehen,

10 gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder

f) Carboxamid-Derivate der Formel (IV)

15

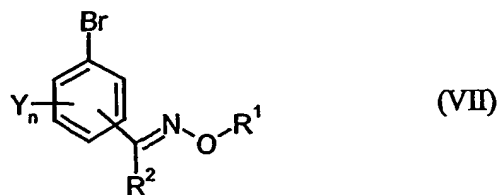


in welcher

X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben,

20

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)



in welcher

R^1 , R^2 , Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

5 in Gegenwart eines Palladium- oder Platin-Katalysators, in Gegenwart von 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

10 Schließlich wurde gefunden, dass die neuen Pyrazolylbiphenylcarboxamide der Formel (I) sehr gute mikrobizide Eigenschaften besitzen und zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen sowohl im Pflanzenschutz als auch im Materialschutz verwendbar sind.

15 Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen Pyrazolylbiphenylcarboxamide der Formel (I) eine wesentlich bessere fungizide Wirksamkeit als die konstitutionell ähnlichsten, vorbekannten Wirkstoffe gleicher Wirkungsrichtung.

Die erfindungsgemäßen Pyrazolylbiphenylcarboxamide sind durch die Formel (I)
20 allgemein definiert.

R^1 steht bevorzugt für Wasserstoff, C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 - C_2 -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Benzyl oder Pyridylmethyl.

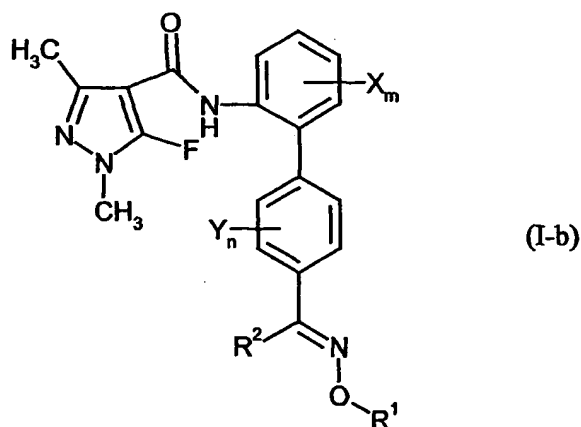
25 R^2 steht bevorzugt für Wasserstoff oder C_1 - C_4 -Alkyl.

X steht bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C_1 - C_6 -Alkyl, C_1 - C_2 -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C_1 - C_6 -Alkoxy, C_1 - C_2 -Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C_1 - C_6 -Alkylthio, C_1 - C_2 -Halogenalkylthio mit 1 bis 5
30

Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, C₂-C₆-Alkenyloxy, C₂-C₆-Alkinyloxy, C₃-C₇-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxycarbonyl oder für -C(R²)=N-OR¹.

- 5 m steht bevorzugt für ganze Zahlen von 0 bis 3, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht.
- 10 Y steht bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₂-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, C₂-C₆-Alkenyloxy, C₂-C₆-Alkinyloxy, C₃-C₇-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxycarbonyl oder C₁-C₄-Alkoximino-C₁-C₄-alkyl.
- 15 n steht bevorzugt für ganze Zahlen von 0 bis 3, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2 oder 3 steht.
- 20 R¹ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, i-Propyl, n-Butyl, i-Butyl, s-Butyl, t-Butyl, 2-Chlorethyl, Benzyl, 2-Pyridylmethyl, 3-Pyridylmethyl oder 4-Pyridylmethyl.
- R² steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, i-Propyl oder n-Butyl.
- 25 X steht besonders bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, sek.-Butyl, i-Butyl, tert.-Butyl, Trichlormethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Trifluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Allyloxy, Propargyloxy, 30 Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cycloheptyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl oder für -C(R²)=N-OR¹.

- m steht besonders bevorzugt für ganze Zahlen von 0 bis 2, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 steht.
- Y steht besonders bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, sek.-Butyl, i-Butyl, tert.-Butyl, Trichlormethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Trifluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Allyloxy, Propargyloxy, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cycloheptyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl oder Methoximinomethyl.
- n steht besonders bevorzugt für ganze Zahlen von 0 bis 2, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2 steht.
- Bevorzugt sind auch Verbindungen der Formel (I-b)

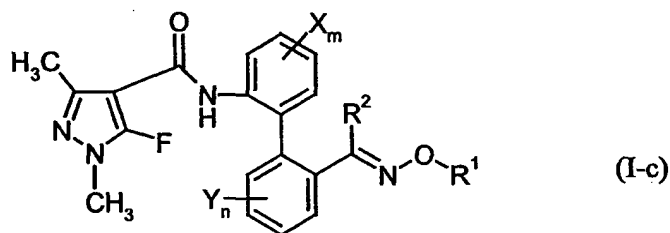


in welcher

- R¹, R², X, m, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben.

Insbesondere bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I-b), in welchen R^1 , R^2 , X, m, Y und n die oben als bevorzugt oder besonders bevorzugt angegebenen Bedeutungen haben.

5 Bevorzugt sind außerdem Verbindungen der Formel (I-c)



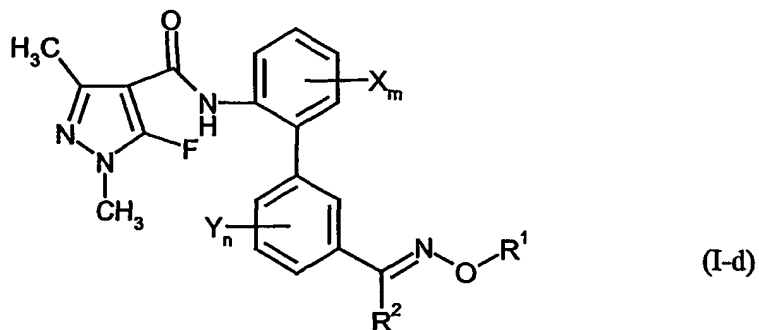
in welcher

10 R^1 , R^2 , X, m, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben.

Insbesondere bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I-c), in welchen R^1 , R^2 , X, m, Y und n die oben als bevorzugt oder besonders bevorzugt angegebenen Bedeutungen haben.

15

Bevorzugt sind außerdem Verbindungen der Formel (I-d)



in welcher

20

R^1 , R^2 , X, m, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben.

Insbesondere bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I-d), in welchen R^1 , R^2 , X, m, Y und n die oben als bevorzugt oder besonders bevorzugt angegebenen Bedeutungen haben.

- 5 Bevorzugt oder besonders bevorzugt sind Verbindungen, welche die unter bevorzugt oder besonders bevorzugt genannten Substituenten tragen.

- 10 Gesättigte oder ungesättigte Kohlenwasserstoffreste wie Alkyl oder Alkenyl können, auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie z.B. in Alkoxy, soweit möglich, jeweils geradkettig oder verzweigt sein.

- 15 Gegebenenfalls substituierte Reste können einfach oder mehrfach substituiert sein, wobei bei Mehrfachsubstitutionen die Substituenten gleich oder verschieden sein können. Mehrere Reste mit denselben Indizes wie beispielsweise m Reste X für $m > 1$, können gleich oder verschieden sein.

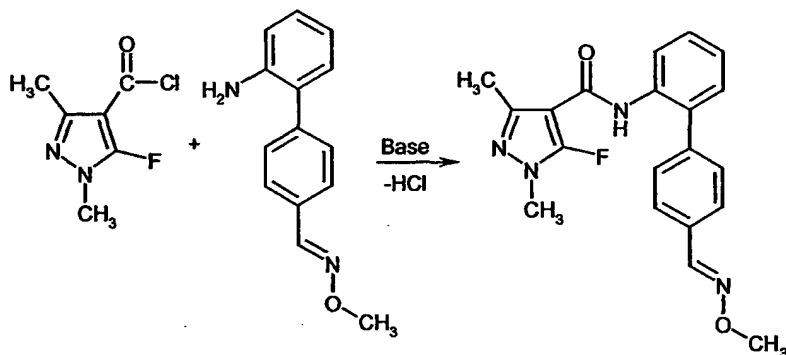
- 20 Durch Halogen substituierte Reste, wie z.B. Halogenalkyl, sind einfach oder mehrfach halogeniert. Bei mehrfacher Halogenierung können die Halogenatome gleich oder verschieden sein. Halogen steht dabei für Fluor, Chlor, Brom und Iod, insbesondere für Fluor, Chlor und Brom.

- 25 Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen bzw. Erläuterungen können jedoch auch untereinander, also zwischen den jeweiligen Bereichen und Vorzugsbereichen beliebig kombiniert werden. Sie gelten für die Endprodukte sowie für die Vor- und Zwischenprodukte entsprechend.

Die genannten Definitionen können untereinander in beliebiger Weise kombiniert werden. Außerdem können auch einzelne Definitionen entfallen.

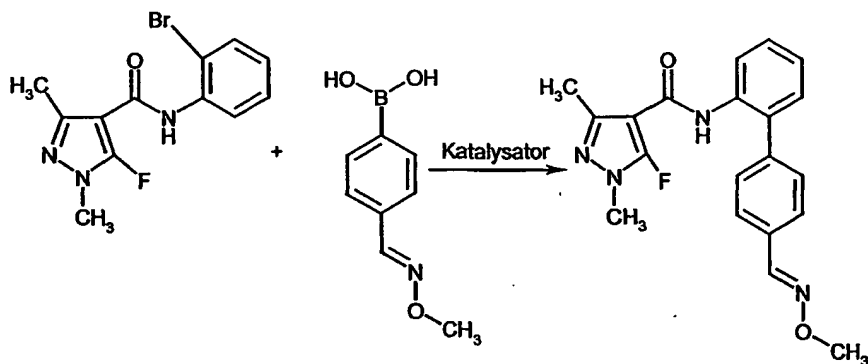
Verwendet man 1,3-Dimethyl-5-fluorpyrazol-4-carbonsäurechlorid und 2-(4-Methoximinomethyl-phenyl)-anilin als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

5



10

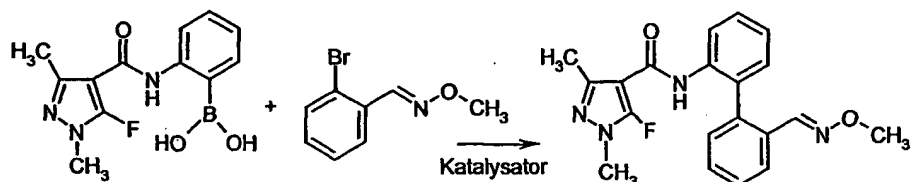
Verwendet man 1,3-Dimethyl-5-fluorpyrazol-4-carbonsäure-(2-brom)-anilid und (4-Methoximinomethyl)-phenylboronsäure als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.



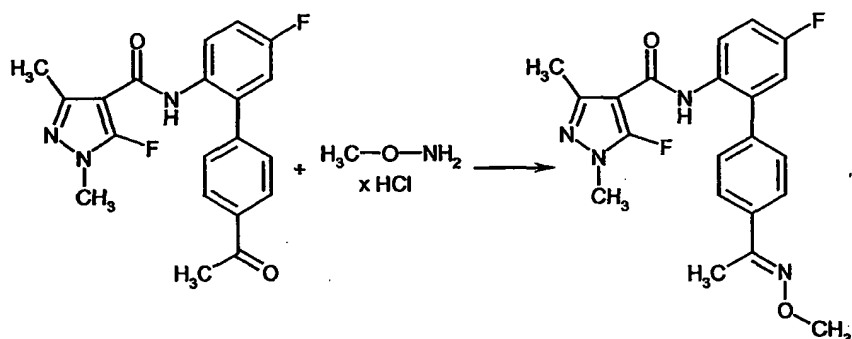
15

Verwendet man 2-[(1,3-Dimethyl-5-fluorpyrazol-4-yl)carbonylamino]phenyl-boronsäure und 1-Brom-2-methoximinomethyl-benzol als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

- 14 -



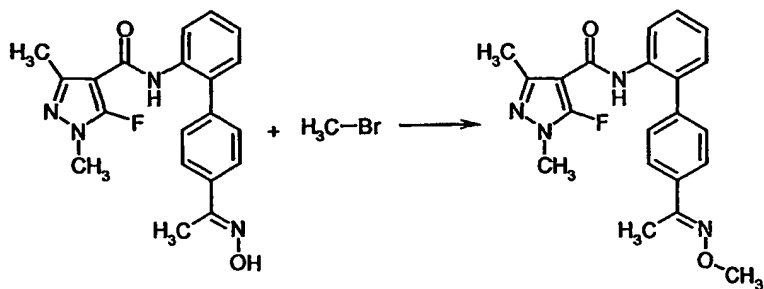
5 Verwendet man 1,3-Dimethyl-5-fluorpyrazol-4-carbonsäure-[2-(4-acetyl-phenyl)-4-fluor]-anilid und Methoxaminhydrochlorid als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.



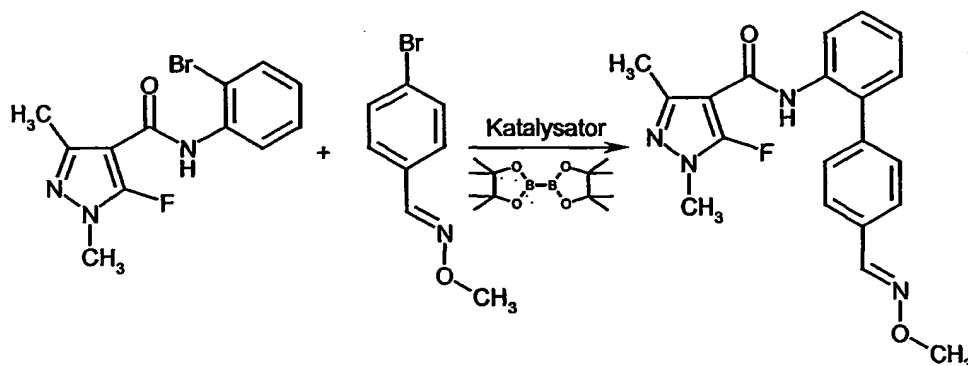
10

Verwendet man 1,3-Dimethyl-5-fluorpyrazol-4-carbonsäure-[2-(4-hydroximino-ethyl)-phenyl]-anilid und Methylbromid als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

15



Verwendet man 1,3-Dimethyl-5-fluorpyrazol-4-carbonsäure-(2-brom)-anilid und 1-Brom-4-methoximinomethyl-benzol als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator und 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (f) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.



Erläuterung der Verfahren und Zwischenprodukte

10

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe benötigten Carbonsäure-Derivate sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel steht G steht bevorzugt für Chlor, Brom, Hydroxy, Methoxy oder Ethoxy, besonders bevorzugt für Chlor, Hydroxy oder Methoxy.

15

Die Carbonsäure-Derivate der Formel (II) sind bekannt oder lassen sich nach bekannten Verfahren herstellen (vgl. WO 93/11 117, EP-A 0 545 099, EP-A 0 589 301 und EP-A 0 589 313).

20

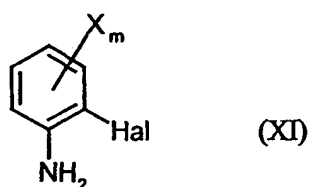
Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Reaktionskomponenten benötigten Anilin-Derivate sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel haben R¹, R², X, m, Y und n vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe

der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden.

Die Anilin-Derivate der Formel (III) sind neu. Sie lassen sich teilweise nach bekannten Methoden herstellen (vgl. EP-A 0 545 099 und EP-A 0 589 301).

Man erhält Anilin-Derivate der Formel (III) außerdem, indem man

g) 2-Halogenanilin-Derivate der allgemeinen Formel (XI)

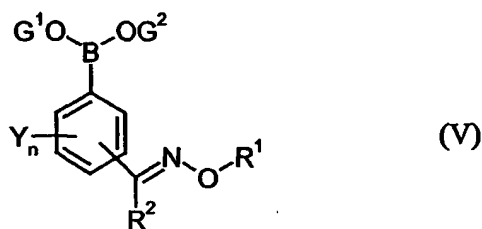


in welcher

X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Hal für Halogen steht,

mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)



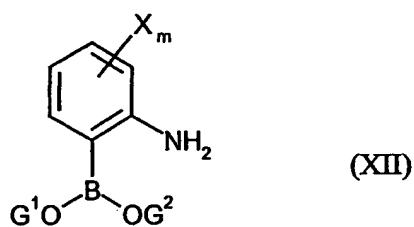
in welcher R¹, R², Y, n, G¹ und G² die oben angegebenen Bedeutungen haben,

- 17 -

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umgesetzt

5 oder

h) Anilinboronsäuren der Formel (XII)

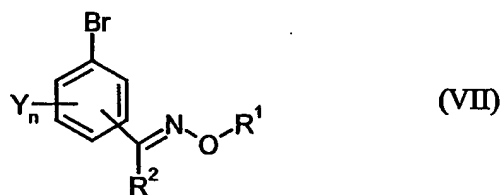


10 in welcher

X, m, G¹ und G² die oben angegebenen Bedeutungen haben

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

15



in welcher R¹, R², Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umgesetzt.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (g) als Reaktionskomponenten benötigten 2-Halogenanilin-Derivate sind durch die Formel (XI) allgemein definiert. In dieser Formel haben X und m vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices
5 genannt wurden. Hal steht vorzugsweise für Fluor, Chlor oder Brom, besonders bevorzugt für Chlor oder Brom.

Die 2-Halogenanilin-Derivate der Formel (XI) sind kommerziell erhältlich oder
10 lassen sich aus den entsprechenden Nitroverbindungen durch Reduktion herstellen.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (h) als Reaktionskomponenten benötigten Anilinboronsäuren sind durch die Formel (XII) allgemein definiert. In dieser Formel haben X und m vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices
15 genannt wurden. G¹ und G² stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder gemeinsam für Tetramethylethylen.

20 Die Anilinboronsäuren der Formel (XII) sind kommerziell erhältlich.

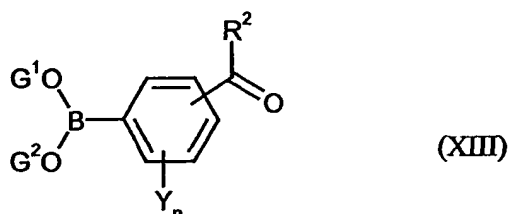
Die bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (b) und (f) als Ausgangsstoffe benötigten Carboxamid-Derivate sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser Formel stehen X und m vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.
25

Die Carboxamid-Derivate der Formel (IV) sind bekannt oder lassen sich nach bekannten Verfahren herstellen (vgl. WO 91/01311, EP-A 0 371 950).
30

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) sowie des Verfahrens (g) als Reaktionskomponenten benötigten Boronsäure-Derivate sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In dieser Formel haben R^1 , R^2 , Y und n vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden.

Die Boronsäure-Derivate der Formel (V) sind neu und lassen sich herstellen, indem man

i) Phenylboronsäuren der Formel (XIII)



in welcher

R^2 , Y, n, G^1 und G^2 die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Alkoxaminen der Formel (IX)



in welcher

R^1 die oben angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umgesetzt.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (h) als Reaktionskomponenten benötigten Phenylboronsäuren sind durch die Formel (XIII) allgemein definiert. In dieser Formel haben R^2 , Y und n, vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe
5 der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden. G^1 und G^2 stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder gemeinsam für Tetramethylethylen.

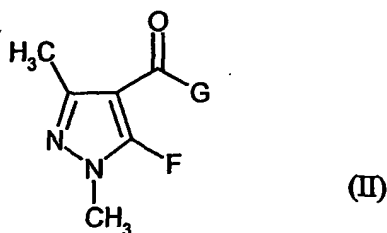
Die Phenylboronsäuren der Formel (XIII) sind kommerziell erhältlich.

10

Die bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (c) als Reaktionskomponenten benötigten Carboxamid-Boronsäure-Derivate sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In dieser Formel stehen X und m vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden. G^1 und G^2 stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder
15 gemeinsam für Tetramethylethylen.

Die Carboxamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI) sind neu. Sie lassen sich
20 herstellen, indem man

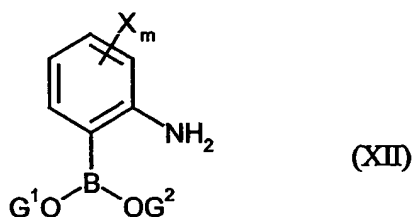
j) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)



25 in welcher

G die oben angegebenen Bedeutungen hat,

mit Anilinboronsäuren der Formel (XII)



5 in welcher

X, m, G¹ und G² die oben angegebenen Bedeutungen haben

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls
 10 in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegeben-
 enfalls in Gegenwart eines Katalysators umgesetzt.

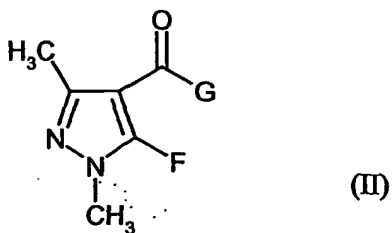
Die bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (c), (f) und (h) als
 Reaktionskomponenten benötigten Phenyloxim-Derivate sind durch die Formel (VII)
 15 allgemein definiert. In dieser Formel stehen R¹, R², Y und n vorzugsweise für
 diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der
 erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. beson-
 ders bevorzugt genannt wurden.

20 Die Phenyloxim-Derivate der Formel (VII) sind bekannt oder lassen sich nach
 bekannten Verfahren herstellen (vgl. Synth. Commun. 2000, 30, 665-669, Synth.
 Commun. 1999, 29, 1697-1701).

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) als Ausgangsstoffe
 25 benötigten Biphenylacyl-Derivate sind durch die Formel (VIII) allgemein definiert.
 In dieser Formel stehen R², X, m, Y und n für diejenigen Bedeutungen, die bereits in
 Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I)
 für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.

Die Biphenylacyl-Derivate der Formel (VIII) sind neu. Sie lassen sich herstellen, indem man

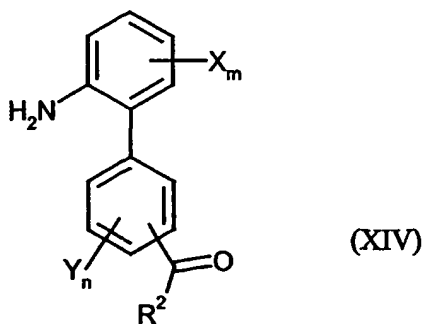
- 5 k) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)



in welcher

- 10 G die oben angegebenen Bedeutungen hat,

mit 2-Benzaldehyd-anilin-Derivaten der Formel (XIV)



- 15 in welcher

R^2 , X, m, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

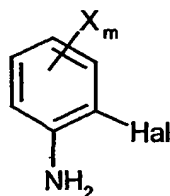
gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls
20 in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels umgesetzt.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (k) als Reaktionskomponenten benötigten 2-Benzaldehyd-anilin-Derivate sind durch die Formel (XIV) allgemein definiert. In dieser Formel stehen R^2 , X, m, Y und n vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.

Die 2-Benzaldehyd-anilin-Derivate der Formel (XIV) sind neu. Sie lassen sich herstellen, indem man

10

1) Anilin-Derivate der Formel (XI)



(XI)

in welcher

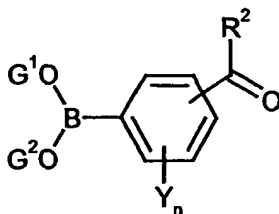
15

X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Hal für Halogen steht,

20

mit Phenylboronsäure-Derivaten der Formel (XIII)



(XIII)

in welcher

R^2 , Y, n, G^1 und G^2 die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels umgesetzt.

5

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) sowie des Verfahrens (i) als Reaktionskomponenten benötigten Alkoxamine sind durch die Formel (IX) allgemein definiert. In dieser Formel hat R^1 vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diesen Rest genannt wurden. Bevorzugt werden die in der Beschreibung angegebenen Hydrochloride eingesetzt. Es können aber auch die freien Alkoxamine in dem erfindungsgemäßen Verfahren verwendet werden.

15 Die Alkoxamine der Formel (IX) sind kommerziell erhältlich.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) als Ausgangsstoffe benötigten Hydroxylamin-Derivate sind durch die Formel (I-a) allgemein definiert. In dieser Formel steht R^2 , X, m, Y und n vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.

25 Die erfindungsgemäßen Hydroxylamin-Derivate der Formel (I-a) sind neu. Sie lassen sich nach einem der oben beschriebenen erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d) oder (f) herstellen.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) als Reaktionskomponenten benötigten Verbindungen sind durch die Formel (X) allgemein definiert. In dieser Formel steht R^3 bevorzugt für C_1 - C_4 -Alkyl, besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, n-Propyl, i-Propyl oder n-Butyl. E steht bevorzugt für Chlor, Brom, Iod,

30

Methansulfonyl oder p-Toluolsulfonyl. E steht besonders bevorzugt für Chlor oder Brom.

Die Verbindungen der Formel (X) sind kommerziell erhältlich.

5

Als Säurebindemittel kommen bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) jeweils alle für derartige Reaktionen üblichen anorganischen und organischen Basen in Betracht. Vorzugsweise verwendbar sind Erdalkali- oder Alkalimetallhydroxide, wie Natriumhydroxid, Calciumhydroxid, Kaliumhydroxid, oder auch Ammoniumhydroxid, Alkalimetallcarbonate, wie Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat, Alkali- oder Erdalkalimetallacetate wie Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU). Es ist jedoch auch möglich, ohne zusätzliches Säurebindemittel zu arbeiten, oder die Aminkomponente in einem Überschuss einzusetzen, so dass sie gleichzeitig als Säurebindemittel fungiert.

10

15

20

25

30

Als Verdünnungsmittel kommen bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) jeweils alle üblichen inerten, organischen Solventien in Frage. Vorzugsweise verwendbar sind gegebenenfalls halogenierte aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-t-amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder i-Butyronitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester

wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, Sulfoxide, wie Dimethylsulf-
oxid oder Sulfone, wie Sulfolan.

5 Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen
Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) jeweils in einem größeren Bereich variiert
werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0°C und 140°C,
vorzugsweise zwischen 10°C und 120°C.

10 Bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f)
arbeitet man im allgemeinen jeweils unter Atmosphärendruck. Es ist aber auch mög-
lich, jeweils unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

15 Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) setzt man auf 1 Mol an
Säurehalogenid der Formel (II) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an
Anilin-Derivat der Formel (III) sowie 1 bis 3 Mol an Säurebindemittel ein. Es ist
jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzu-
setzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt
man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, die orga-
nische Phase abtrennt und nach dem Trocknen unter vermindertem Druck einengt.
20 Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie
Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verun-
reinigungen befreit werden.

25 Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) setzt man auf 1 Mol an
Carboxamid der Formel (IV) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an
Boronsäure-Derivat der Formel (V) sowie 1 bis 5 Mol an Säurebindemittel ein. Es ist
jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzu-
setzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt
man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Nieder-
schlag abtrennt und trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach
30

üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) setzt man auf 1 Mol an
5 Carboxamid-Boronsäure-Derivat der Formel (VI) im allgemeinen 1 Mol oder auch
einen Überschuss an Phenylloxim-Derivat der Formel (VII) sowie 1 bis 10 Mol an
Säurebindemittel und 0.5 bis 5 Molprozent eines Katalysators ein. Es ist jedoch auch
möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Auf-
arbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der
10 Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Niederschlag
abtrennt und trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach
üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch
vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) setzt man auf 1 Mol an
15 Biphenylacyl-Derivat der Formel (VIII) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Über-
schuss an Alkoxamin der Formel (IX) sowie 1 bis 5 Mol an Säurebindemittel ein. Es
ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzu-
setzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt
20 man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Nieder-
schlag abtrennt, mit Wasser und Diisopropylether wäscht und anschließend trocknet.
Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie
Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verun-
reinigungen befreit werden.

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) setzt man auf 1 Mol an
25 Hydroxylamin-Derivat der Formel (I-a) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Über-
schuss an Reagenz der Formel (X) sowie 1 bis 5 Mol an Säurebindemittel ein. Es ist
jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzu-
30 setzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt
man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Nieder-

schlag abtrennt und trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

- 5 Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (f) setzt man auf 1 Mol an Carboxamid-Derivat der Formel (IV) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Phenylloxim-Derivat der Formel (VII) sowie 1 bis 5 Mol an Säurebinde-
mittel ein, sowie 1 bis 5 Mol eines Katalysators. Es ist jedoch auch möglich, die
10 Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Niederschlag abtrennt und trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Ver-
unreinigungen befreit werden.

15

Die erfindungsgemäßen Stoffe weisen eine starke mikrobizide Wirkung auf und können zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen, wie Fungi und Bakterien, im Pflanzenschutz und im Materialschutz eingesetzt werden.

- 20 Fungizide lassen sich Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes und Deuteromycetes einsetzen.

- Bakterizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Pseudomonadaceae,
25 Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomycetaceae einsetzen.

Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

30

Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise *Xanthomonas campestris* pv. *oryzae*;

- Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise *Pseudomonas syringae* pv. *lachrymans*;
Erwinia-Arten, wie beispielsweise *Erwinia amylovora*;
Pythium-Arten, wie beispielsweise *Pythium ultimum*;
Phytophthora-Arten, wie beispielsweise *Phytophthora infestans*;
5 Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise *Pseudoperonospora humuli* oder
Pseudoperonospora cubensis;
Plasmopara-Arten, wie beispielsweise *Plasmopara viticola*;
Bremia-Arten, wie beispielsweise *Bremia lactucae*;
Peronospora-Arten, wie beispielsweise *Peronospora pisi* oder *P. brassicae*;
10 Erysiphe-Arten, wie beispielsweise *Erysiphe graminis*;
Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise *Sphaerotheca fuliginea*;
Podosphaera-Arten, wie beispielsweise *Podosphaera leucotricha*;
Venturia-Arten, wie beispielsweise *Venturia inaequalis*;
Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise *Pyrenophora teres* oder *P. graminea*;
15 (Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);
Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise *Cochliobolus sativus*
(Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);
Uromyces-Arten, wie beispielsweise *Uromyces appendiculatus*;
Puccinia-Arten, wie beispielsweise *Puccinia recondita*;
20 *Sclerotinia*-Arten, wie beispielsweise *Sclerotinia sclerotiorum*;
Tilletia-Arten, wie beispielsweise *Tilletia caries*;
Ustilago-Arten, wie beispielsweise *Ustilago nuda* oder *Ustilago avenae*;
Pellicularia-Arten, wie beispielsweise *Pellicularia sasakii*;
Pyricularia-Arten, wie beispielsweise *Pyricularia oryzae*;
25 *Fusarium*-Arten, wie beispielsweise *Fusarium culmorum*;
Botrytis-Arten, wie beispielsweise *Botrytis cinerea*;
Septoria-Arten, wie beispielsweise *Septoria nodorum*;
Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise *Leptosphaeria nodorum*;
Cercospora-Arten, wie beispielsweise *Cercospora canescens*;
30 *Alternaria*-Arten, wie beispielsweise *Alternaria brassicae*;
Pseudocercospora-Arten, wie beispielsweise *Pseudocercospora herpotrichoides*.

Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen Pflanzenteilen, von Pflanz- und Saatgut, und des Bodens.

5

Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von Krankheiten im Wein-, Obst- und Gemüseanbau einsetzen, wie beispielsweise gegen *Venturia*-, *Botrytis*-, *Sclerotinia*-, *Rhizoctonia*-, *Uncinula*-, *Sphaerotheca*-, *Podosphaera*-, *Alternaria*- und *Colletotrichum*-Arten. Mit gutem Erfolg werden auch Reiskrankheiten, wie *Pyricularia*- und *Pellicularia*-Arten, bekämpft.

10

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich auch zur Steigerung des Erntertrages. Sie sind außerdem mindertoxisch und weisen eine gute Pflanzenverträglichkeit auf.

15

Erfindungsgemäß können alle Pflanzen und Pflanzenteile behandelt werden. Unter Pflanzen werden hierbei alle Pflanzen und Pflanzenpopulationen verstanden, wie erwünschte und unerwünschte Wildpflanzen oder Kulturpflanzen (einschließlich natürlich vorkommender Kulturpflanzen). Kulturpflanzen können Pflanzen sein, die durch konventionelle Züchtungs- und Optimierungsmethoden oder durch biotechnologische und gentechnologische Methoden oder Kombinationen dieser Methoden erhalten werden können, einschließlich der transgenen Pflanzen und einschließlich der durch Sortenschutzrechte schützba- ren oder nicht schützba- ren Pflanzensorten. Unter Pflanzenteilen sollen alle oberirdischen und unterirdischen Teile und Organe der Pflanzen, wie Spross, Blatt, Blüte und Wurzel verstanden werden, wobei beispielhaft Blätter, Nadeln, Stengel, Stämme, Blüten, Fruchtkörper, Früchte und Samen sowie Wurzeln, Knollen und Rhizome aufgeführt werden. Zu den Pflanzenteilen gehört auch Erntegut sowie vegetatives und generatives Vermehrungsmaterial, beispielsweise Stecklinge, Knollen, Rhizome, Ableger und Samen.

20

25

30

Im Materialschutz lassen sich die erfindungsgemäßen Stoffe zum Schutz von technischen Materialien gegen Befall und Zerstörung durch unerwünschte Mikroorganismen einsetzen.

5 Unter technischen Materialien sind im vorliegenden Zusammenhang nichtlebende Materialien zu verstehen, die für die Verwendung in der Technik zubereitet worden sind. Beispielsweise können technische Materialien, die durch erfindungsgemäße Wirkstoffe vor mikrobieller Veränderung oder Zerstörung geschützt werden sollen, Klebstoffe, Leime, Papier und Karton, Textilien, Leder, Holz, Anstrichmittel und
10 Kunststoffartikel, Kühlschmierstoffe und andere Materialien sein, die von Mikroorganismen befallen oder zersetzt werden können. Im Rahmen der zu schützenden Materialien seien auch Teile von Produktionsanlagen, beispielsweise Kühlwasserkreisläufe, genannt, die durch Vermehrung von Mikroorganismen beeinträchtigt werden können. Im Rahmen der vorliegenden Erfindung seien als technische Materialien vorzugsweise Klebstoffe, Leime, Papiere und Kartone, Leder, Holz, Anstrichmittel, Kühlschmiermittel und Wärmeübertragungsflüssigkeiten genannt, besonders
15 bevorzugt Holz.

Als Mikroorganismen, die einen Abbau oder eine Veränderung der technischen
20 Materialien bewirken können, seien beispielsweise Bakterien, Pilze, Hefen, Algen und Schleimorganismen genannt. Vorzugsweise wirken die erfindungsgemäßen Wirkstoffe gegen Pilze, insbesondere Schimmelpilze, holzverfärbende und holzzerstörende Pilze (Basidiomyceten) sowie gegen Schleimorganismen und Algen.

25 Es seien beispielsweise Mikroorganismen der folgenden Gattungen genannt:

Alternaria, wie *Alternaria tenuis*,
Aspergillus, wie *Aspergillus niger*,
Chaetomium, wie *Chaetomium globosum*,
Coniophora, wie *Coniophora puetana*,
30 Lentinus, wie *Lentinus tigrinus*,
Penicillium, wie *Penicillium glaucum*,

- Polyporus, wie Polyporus versicolor,
Aureobasidium, wie Aureobasidium pullulans,
Sclerophoma, wie Sclerophoma pityophila,
Trichoderma, wie Trichoderma viride,
5 Escherichia, wie Escherichia coli,
Pseudomonas, wie Pseudomonas aeruginosa,
Staphylococcus, wie Staphylococcus aureus.

10 Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/oder chemischen Eigenschaften in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

- 15 Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von
20 Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine,
25 z.B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser. Mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind
30 Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid. Als feste Trägerstoffe

kommen in Frage: z.B. natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate. Als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte
5 natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnussschalen, Maiskolben und Tabakstängel. Als Emulgier und/oder schaum erzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäureester, Polyoxyethylen-Fettalkoholether, z.B. Alkylaryl polyglycolether, Alkylsulfonate,
10 Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate. Als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche
15 und synthetische pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine, und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

20 Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe, wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

25 Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Fungiziden, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden
30 oder Insektiziden verwendet werden, um so z.B. das Wirkungsspektrum zu verbreitern oder Resistenzentwicklungen vorzubeugen. In vielen Fällen erhält man dabei

synergistische Effekte, d.h. die Wirksamkeit der Mischung ist größer als die Wirksamkeit der Einzelkomponenten.

Als Mischpartner kommen zum Beispiel folgende Verbindungen in Frage:

5

Fungizide:

Aldimorph, Ampropylfos, Ampropylfos-Kalium, Andoprim, Anilazin, Azaconazol, Azoxystrobin,

10 Benalaxyl, Benodanil, Benomyl, Benzamacril, Benzamacryl-isobutyl, Bialaphos, Binapacryl, Biphenyl, Bitertanol, Blasticidin-S, Bromuconazol, Bupirimat, Buthiobat,

Calciumpolysulfid, Capsimycin, Captafol, Captan, Carbendazim, Carboxin, Carvon, Chinomethionat (Quinomethionat), Chlobenthiazon, Chlorfenazol, Chloroneb, Chloropicrin, Chlorothalonil, Chlozolinat, Clozylacon, Cufraneb, Cymoxanil,
15 Cyproconazol, Cyprodinil, Cyprofuram,

Debacarb, Dichlorophen, Diclobutrazol, Diclofluanid, Diclomezin, Dicloran, Diethofencarb, Difenconazol, Dimethirimol, Dimethomorph, Diniconazol, Diniconazol-M, Dinocap, Diphenylamin, Dipyrithione, Ditalimfos, Dithianon, Dodemorph, Dodine, Drazoxolon,

20 Ediphenphos, Epoxiconazol, Etaconazol, Ethirimol, Etridiazol, Famoxadon, Fenapanil, Fenarimol, Fenbuconazol, Fenfuram, Fenitropan, Fencpiclonil, Fenpropidin, Fenpropimorph, Fentinacetat, Fentinhydroxyd, Ferbam, Ferimzon, Fluazinam, Flumetover, Fluoromid, Fluquinconazol, Flurprimidol, Flusilazol, Flusulfamid, Flutolanil, Flutriafol, Folpet, Fosetyl-Aluminium, Fosetyl-Natrium, Fthalid, Fuberidazol, Furalaxyl, Furametpyr, Furcarbonil, Furconazol,
25 Furconazol-cis, Fumecyclox, Guazatin,

Hexachlorobenzol, Hexaconazol, Hymexazol,

Imazalil, Imibenconazol, Iminoctadin, Iminoctadinealbesilat, Iminoctadinetriacetat,

30 Iodocarb, Iaconazol, Iprobenfos (IBP), Iprodione, Irumamycin, Isoprothiolan, Isovaledione,

- Kasugamycin, Kresoxim-methyl, Kupfer-Zubereitungen, wie: Kupferhydroxid, Kupfernaphthenat, Kupferoxychlorid, Kupfersulfat, Kupferoxid, Oxin-Kupfer und Bordeaux-Mischung,
- Mancopper, Mancozeb, Maneb, Meferimzone, Mepanipyrim, Mepronil, Metalaxyl,
- 5 Metconazol, Methasulfocarb, Methfuroxam, Metiram, Metomeclam, Metsulfovax, Mildiomycin, Myclobutanil, Myclozolin,
- Nickel-dimethyldithiocarbamat, Nitrothal-isopropyl, Nuarimol,
- Ofurace, Oxadixyl, Oxamocarb, Oxolinicacid, Oxycarboxim, Oxyfenthin,
- Paclobutrazol, Pefurazoat, Penconazol, Pencycuron, Phosdiphen, Pimaricin,
- 10 Piperalin, Polyoxin, Polyoxorim, Probenazol, Prochloraz, Procymidon, Propamocarb, Propanosine-Natrium, Propiconazol, Propineb, Pyrazophos, Pyrifenox, Pyrimethanil, Pyroquilon, Pyroxyfur,
- Quinconazol, Quintozen (PCNB), Quinoxifen,
- Schwefel und Schwefel-Zubereitungen,
- 15 Tebuconazol, Tecloftalam, Tecnazen, Tetcyclacis, Tetraconazol, Thiabendazol, Thicyofen, Thifluzamide, Thiophanate-methyl, Thiram, Tioxymid, Tolclofos-methyl, Tolyfluanid, Triadimefon, Triadimenol, Triazbutil, Triazoxid, Trichlamid, Tricyclazol, Tridemorph, Triflumizol, Triforin, Triticonazol, Uniconazol,
- 20 Validamycin A, Vinclozolin, Viniconazol,
- Zarilamid, Zineb, Ziram sowie
- Dagger G,
- OK-8705,
- OK-8801,
- 25 α -(1,1-Dimethylethyl)- β -(2-phenoxyethyl)-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,
- α -(2,4-Dichlorphenyl)- β -fluor- β -propyl-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,
- α -(2,4-Dichlorphenyl)- β -methoxy- α -methyl-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,
- α -(5-Methyl-1,3-dioxan-5-yl)- β -[[4-(trifluormethyl)-phenyl]-methylen]-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,
- 30 (5RS,6RS)-6-Hydroxy-2,2,7,7-tetramethyl-5-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-3-octanon,
- (E)- α -(Methoxyimino)-N-methyl-2-phenoxy-phenylacetamid,

- {2-Methyl-1-[[[1-(4-methylphenyl)-ethyl]-amino]-carbonyl]-propyl}-carbaminsäure-1-isopropylester,
1-(2,4-Dichlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-ethanon-O-(phenylmethyl)-oxim,
1-(2-Methyl-1-naphthalenyl)-1H-pyrrol-2,5-dion,
5 1-(3,5-Dichlorphenyl)-3-(2-propenyl)-2,5-pyrrolidindion,
1-[(Diiodmethyl)-sulfonyl]-4-methyl-benzol,
1-[[2-(2,4-Dichlorphenyl)-1,3-dioxolan-2-yl]-methyl]-1H-imidazol,
1-[[2-(4-Chlorphenyl)-3-phenyloxiranyl]-methyl]-1H-1,2,4-triazol,
1-[1-[2-[(2,4-Dichlorphenyl)-methoxy]-phenyl]-ethenyl]-1H-imidazol,
10 1-Methyl-5-nonyl-2-(phenylmethyl)-3-pyrrolidinol,
2',6'-Dibrom-2-methyl-4'-trifluormethoxy-4'-trifluor-methyl-1,3-thiazol-5-carboxanilid,
2,2-Dichlor-N-[1-(4-chlorphenyl)-ethyl]-1-ethyl-3-methyl-cyclopropancarboxamid,
2,6-Dichlor-5-(methylthio)-4-pyrimidinyl-thiocyanat,
15 2,6-Dichlor-N-(4-trifluormethylbenzyl)-benzamid,
2,6-Dichlor-N-[[4-(trifluormethyl)-phenyl]-methyl]-benzamid,
2-(2,3,3-Triiod-2-propenyl)-2H-tetrazol,
2-[(1-Methylethyl)-sulfonyl]-5-(trichlormethyl)-1,3,4-thiadiazol,
2-[[6-Deoxy-4-O-(4-O-methyl-β-D-glucopyranosyl)-α-D-glucopyranosyl]-amino]-4-
20 methoxy-1H-pyrrolo[2,3-d]pyrimidin-5-carbonitril,
2-Aminobutan,
2-Brom-2-(brommethyl)-pentandinitril,
2-Chlor-N-(2,3-dihydro-1,1,3-trimethyl-1H-inden-4-yl)-3-pyridincarboxamid,
2-Chlor-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-(isothiocyanatomethyl)-acetamid,
25 2-Phenylphenol(OPP),
3,4-Dichlor-1-[4-(difluormethoxy)-phenyl]-1H-pyrrol-2,5-dion,
3,5-Dichlor-N-[cyan[(1-methyl-2-propynyl)-oxy]-methyl]-benzamid,
3-(1,1-Dimethylpropyl-1-oxo-1H-inden-2-carbonitril,
3-[2-(4-Chlorphenyl)-5-ethoxy-3-isoxazolidinyl]-pyridin,
30 4-Chlor-2-cyan-N,N-dimethyl-5-(4-methylphenyl)-1H-imidazol-1-sulfonamid,
4-Methyl-tetrazolo[1,5-a]quinazolin-5(4H)-on,

- 8-(1,1-Dimethylethyl)-N-ethyl-N-propyl-1,4-dioxaspiro[4.5]decan-2-methanamin,
8-Hydroxychinolinsulfat,
9H-Xanthen-9-carbonsäure-2-[(phenylamino)-carbonyl]-hydrazid,
bis-(1-Methylethyl)-3-methyl-4-[(3-methylbenzoyl)-oxy]-2,5-thiophendicarboxylat,
5 cis-1-(4-Chlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-cycloheptanol,
cis-4-[3-[4-(1,1-Dimethylpropyl)-phenyl-2-methylpropyl]-2,6-dimethyl-morpholin-
hydrochlorid,
Ethyl-[(4-chlorphenyl)-azo]-cyanoacetat,
Kaliumhydrogencarbonat,
10 Methantetrathiol-Natriumsalz,
Methyl-1-(2,3-dihydro-2,2-dimethyl-1H-inden-1-yl)-1H-imidazol-5-carboxylat,
Methyl-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-(5-isoxazolylcarbonyl)-DL-alaninat,
Methyl-N-(chloracetyl)-N-(2,6-dimethylphenyl)-DL-alaninat,
N-(2,3-Dichlor-4-hydroxyphenyl)-1-methyl-cyclohexancarboxamid.
15 N-(2,6-Dimethylphenyl)-2-methoxy-N-(tetrahydro-2-oxo-3-furanyl)-acetamid,
N-(2,6-Dimethylphenyl)-2-methoxy-N-(tetrahydro-2-oxo-3-thienyl)-acetamid,
N-(2-Chlor-4-nitrophenyl)-4-methyl-3-nitro-benzolsulfonamid,
N-(4-Cyclohexylphenyl)-1,4,5,6-tetrahydro-2-pyrimidinamin,
N-(4-Hexylphenyl)-1,4,5,6-tetrahydro-2-pyrimidinamin,
20 N-(5-Chlor-2-methylphenyl)-2-methoxy-N-(2-oxo-3-oxazolidinyl)-acetamid,
N-(6-Methoxy)-3-pyridinyl)-cyclopropanocarboxamid,
N-[2,2,2-Trichlor-1-[(chloracetyl)-amino]-ethyl]-benzamid,
N-[3-Chlor-4,5-bis-(2-propinyloxy)-phenyl]-N'-methoxy-methanimidamid,
N-Formyl-N-hydroxy-DL-alanin-Natriumsalz,
25 O,O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat,
O-Methyl-S-phenyl-phenylpropylphosphoramidothioate,
S-Methyl-1,2,3-benzothiadiazol-7-carbothioat,
spiro[2H]-1-Benzopyran-2,1'(3'H)-isobenzofuran]-3'-on,

Bakterizide:

Bronopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin, Oethilinin, Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam, Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

5

Insektizide / Akarizide / Nematizide:

- Abamectin, Acephat, Acetamiprid, Acrinathrin, Alanycarb, Aldicarb, Aldoxycarb, Alpha-cypermethrin, Alphamethrin, Amitraz, Avermectin, AZ 60541, Azadirachtin, Azamethiphos, Azinphos A, Azinphos M, Azocyclotin,
- 10 Bacillus popilliae, Bacillus sphaericus, Bacillus subtilis, Bacillus thuringiensis, Baculoviren, Beauveria bassiana, Beauveria tenella, Bendiocarb, Benfuracarb, Bensultap, Benzoximate, Betacyfluthrin, Bifenazate, Bifenthrin, Bioethanomethrin, Biopermethrin, BPMC, Bromophos A, Bufencarb, Buprofezin, Butathiofos, Butocarboxim, Butylpyridaben,
- 15 Cadusafos, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap, Chloethocarb, Chlorethoxyfos, Chlorfenapyr, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron, Chlormephos, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos M, Chlovaphorthrin, Cis-Resmethrin, Cispermethrin, Clocythrin, Cloethocarb, Clofentezine, Cyanophos, Cycloprene, Cycloprothrin, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyromazin,
- 20 Deltamethrin, Demeton M, Demeton S, Demeton-S-methyl, Diafenthiuron, Diazinon, Dichlorvos, Diflubenzuron, Dimethoat, Dimethylvinphos, Diofenolan, Disulfoton, Docusat-sodium, Dofenapyn, Elfusilanate, Enamectin, Empenthrin, Endosulfan, Entomopftthora spp., Esfenvalerate, Ethiofencarb, Ethion, Ethoprophos, Etofenprox, Etoxazole, Etrimphos,
- 25 Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatinoxide, Fenitrothion, Fenothiocab, Fenoxacrim, Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyrithrin, Fenpyroximate, Fenvalerate, Fipronil, Fluazinam, Fluazuron, Flubrocylthrin, Flucycloxuron, Flucylthrin, Flufenoxuron, Flutenzine, Fluvalinate, Fonophos, Fosmethilan, Fosthiazate, Fubfenprox, Furathiocab,
- 30 Granuloseviren, Halofenozide, HCH, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox, Hydroprene,

- Imidacloprid, Isazophos, Isofenphos, Isoxathion, Ivermectin,
 Kernpolyederviren,
 Lamda-cyhalothrin, Lufenuron,
 Malathion, Mecarbam, Metaldehyd, Methamidophos, Metharhizium anisopliae,
 5 Metharhizium flavoviride, Methidathion, Methiocarb, Methomyl, Methoxyfenozide,
 Metolcarb, Metoxadiazone, Mevinphos, Milbemectin, Monocrotophos,
 Naled, Nitenpyram, Nithiazine, Novaluron,
 Omethoat, Oxamyl, Oxydemethon M,
 Paecilomyces fumosoroseus, Parathion A, Parathion M, Permethrin, Phenthoat,
 10 Phorat, Phosalon, Phosmet, Phosphamidon, Phoxim, Pirimicarb, Pirimiphos A,
 Pirimiphos M, Profenophos, Promecarb, Propoxur, Prothiophos, Prothoat,
 Pymetrozine, Pyraclofos, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyridathion,
 Pyrimidifen, Pyriproxifen,
 Quinalphos,
 15 Ribavirin,
 Salithion, Sebufos, Silafluofen, Spinosad, Sulfotep, Sulprofos,
 Tau-fluvalinate, Tebufenozide, Tebufenpyrad, Tebupirimiphos, Teflubenzuron,
 Tefluthrin, Temephos, Temivinphos, Terbufos, Tetrachlorvinphos,
 Thetacypermethrin, Thiamethoxam, Thiapronil, Thiatriphos, Thiocyclam hydrogen
 20 oxalate, Thiodicarb, Thiofanox, Thuringiensin, Tralocythrin, Tralomethrin,
 Triarathene, Triazamate, Triazophos, Triazuron, Trichlophenidine, Trichlorfon,
 Triflumuron, Trimethacarb,
 Vamidothion, Vaniliprole, Verticillium lecanii
 YI 5302
 25 Zeta-Cypermethrin, Zolaprofos
- (1R-cis)-[5-(Phenylmethyl)-3-furanyl]-methyl-3-[(dihydro-2-oxo-3(2H)-
 furanylidene)-methyl]-2,2-dimethylcyclopropanecarboxylat,
 (3-Phenoxyphenyl)-methyl-2,2,3,3-tetramethylcyclopropanecarboxylat,
 30 1-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]tetrahydro-3,5-dimethyl-N-nitro-1,3,5-triazin-2(1H)-
 imin,

- 2-(2-Chlor-6-fluorphenyl)-4-[4-(1,1-dimethylethyl)phenyl]-4,5-dihydro-oxazol,
 2-(Acetyloxy)-3-docecyl-1,4-naphthalinidion,
 2-Chlor-N-[[[4-(1-phenylethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid,
 2-Chlor-N-[[[4-(2,2-dichlor-1,1-difluorethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid,
 5 3-Methylphenyl-propylcarbamate,
 4-[4-(4-Ethoxyphenyl)-4-methylpentyl]-1-fluor-2-phenoxy-benzol,
 4-Chlor-2-(1,1-dimethylethyl)-5-[[2-(2,6-dimethyl-4-phenoxyphenoxy)ethyl]thio]-
 3(2H)-pyridazinon,
 4-Chlor-2-(2-chlor-2-methylpropyl)-5-[(6-iod-3-pyridinyl)methoxy]-3(2H)-
 10 pyridazinon,
 4-Chlor-5[(6-chlor-3-pyridinyl)methoxy]-2-(3,4-dichlorphenyl)-3(2H)-pyridazinon,
Bacillus thuringiensis strain EG-2348,
 Benzoessäure (2-benzoyl-1-(1,1-dimethylethyl)-hydrazid,
 Butan 2,2-dimethyl-3-(2,4-dichlorphenyl)-2-oxo-1-oxaspiro[4.5]dec-3-en-4-yl-ester,
 15 [3-[(6-Chlor-3-pyridinyl)methyl]-2-thiazolidinyliden]-cyanamid,
 Dihydro-2-(nitromethylen)-2H-1,3-thiazine-3(4H)-carboxaldehyd,
 Ethyl-[2-[[1,6-dihydro-6-oxo-1-(phenylmethyl)-4-pyridazinyl]oxy]ethyl]-carbamate,
 N-(3,4,4-Trifluor-1-oxo-3-butenyl)-glycin,
 N-(4-Chlorphenyl)-3-[4-Difluormethoxy]phenyl]-4,5-dihydro-4-phenyl-1H-pyrazol-
 20 1-carboxamid,
 N-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]-N'-methyl-N''-nitro-guanidin,
 N-Methyl-N'-(1-methyl-2-propenyl)-1,2-hydrazindicarbothioamid,
 N-Methyl-N'-2-propenyl-1,2-hydrazindicarbothioamid,
 O,O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat.

25

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren ist möglich.

30

Darüber hinaus weisen die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) auch sehr gute antimykotische Wirkungen auf. Sie besitzen ein sehr breites

antimykotisches Wirkungsspektrum, insbesondere gegen Dermatophyten und Sproßpilze, Schimmel und diphasische Pilze,

z.B. gegen Candida-Spezies wie *Candida albicans*, *Candida glabrata*, Epidermophyton-Spezies wie *Epidermophyton floccosum*, Aspergillus-Spezies wie *Aspergillus niger* und *Aspergillus fumigatus*, Trichophyton-Spezies wie *Trichophyton mentagrophytes*, Microsporon-Spezies wie *Microsporon canis* und *audouinii*.

Die Aufzählung dieser Pilze stellt keinesfalls eine Beschränkung des erfaßbaren mykotischen Spektrums dar, sondern hat nur erläuternden Charakter.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verstäuben, Verschäumen, Bestreichen usw. Es ist ferner möglich, die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-Volume-Verfahren auszubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder den Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

Beim Einsatz der erfindungsgemäßen Wirkstoffe als Fungizide können die Aufwandmengen je nach Applikationsart innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Bei der Behandlung von Pflanzenteilen liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10 000 g/ha, vorzugsweise zwischen 10 und 1 000 g/ha. Bei der Saatgutbehandlung liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,001 und 50 g pro Kilogramm Saatgut, vorzugsweise zwischen 0,01 und 10 g pro Kilogramm Saatgut. Bei der Behandlung des Bodens liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10 000 g/ha, vorzugsweise zwischen 1 und 5 000 g/ha.

Die zum Schutz technischer Materialien verwendeten Mittel enthalten die Wirkstoffe im allgemeinen in einer Menge von 1 bis 95 %, bevorzugt von 10 bis 75 %.

5 Die Anwendungskonzentrationen der erfindungsgemäßen Wirkstoffe richten sich nach der Art und dem Vorkommen der zu bekämpfenden Mikroorganismen sowie nach der Zusammensetzung des zu schützenden Materials. Die optimale Einsatzmenge kann durch Testreihen ermittelt werden. Im allgemeinen liegen die Anwendungskonzentrationen im Bereich von 0,001 bis 5 Gew.-%, vorzugsweise von 0,05 bis 1,0 Gew.-% bezogen auf das zu schützende Material.

10

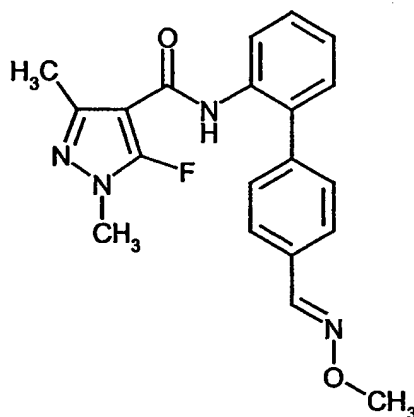
Die Wirksamkeit und das Wirkungsspektrum der erfindungsgemäß im Materialschutz zu verwendenden Wirkstoffe bzw. der daraus herstellbaren Mittel, Konzentrate oder ganz allgemein Formulierungen kann erhöht werden, wenn gegebenenfalls weitere antimikrobiell wirksame Verbindungen, Fungizide, Bakterizide, Herbizide, 15 Insektizide oder andere Wirkstoffe zur Vergrößerung des Wirkungsspektrums oder Erzielung besonderer Effekte wie z.B. dem zusätzlichen Schutz vor Insekten zugesetzt werden. Diese Mischungen können ein breiteres Wirkungsspektrum besitzen als die erfindungsgemäßen Verbindungen.

20

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den folgenden Beispielen hervor.

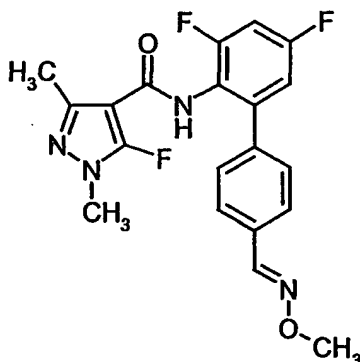
Herstellungsbeispiele

Beispiel 1

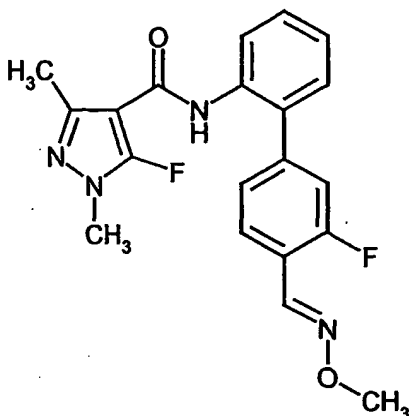


5 Verfahren (a):

Eine Lösung von 1,3 g (0,0057 Mol) 2'-Amino-1,1'-biphenyl-4-carbaldehyde-O-methyloximin in 20 mL Toluol wird bei Raumtemperatur mit 0,57 g (0,0057 Mol) Triethylamin versetzt. In dieses Gemisch lässt man bei Raumtemperatur unter Rühren eine Lösung von 1,0 g (0,0057 Mol) 5-Fluoro-1,3-dimethyl-1H-pyrazol-4-carbonylchlorid in 5 mL Toluol eintropfen. Nach beendeter Zugabe wird das Reaktionsgemisch auf 50°C erwärmt und 2 h bei dieser Temperatur weiter gerührt. Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch auf Raumtemperatur abgekühlt, mit weiteren 25 mL Toluol versetzt und mit Wasser gewaschen. Die organische Phase wird abgetrennt, über Natriumsulfat getrocknet, filtriert und unter vermindertem Druck eingengt. Der verbleibende Rückstand wird aus Diisopropylether umkristallisiert. Man erhält auf diese Weise 1,45 g (69,4 % der Theorie) an 5-Fluor-N-{4'-[(methoxyimino)methyl]-1,1'-biphenyl-2-yl}-1,3-dimethyl-1H-pyrazol-4-carboxamid als farblose Kristalle vom Schmelzpunkt 114 bis 116°C.

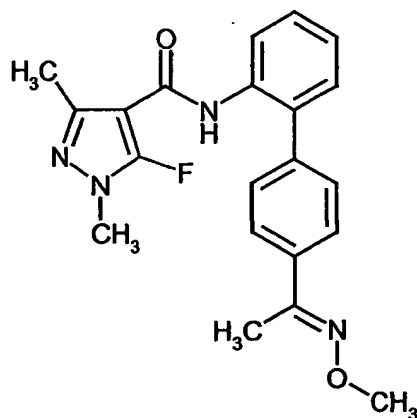
Beispiel 2**Verfahren (b):**

- 5 Ein Gemisch aus 0,35 g (0,001 Mol) N-(2-Brom-4,6-difluorphenyl)-5-fluor-1,3-dimethyl-1H-pyrazol-4-carboxamid, 0,06 g (0,00005 Mol) Tetrakis-(triphenylphosphin) palladium, 0,32 g (0,0018 Mol) 4-[(Methoxyimino)methyl]phenylboronsäure und 10 mL 1,2-Dimethoxyethan wird bei Raumtemperatur mit einer Lösung von 0,5 g (0,0047 Mol) Natriumcarbonat in 3 mL Wasser versetzt. Das Reaktionsgemisch
- 10 wird anschließend auf Rückfluss-Temperatur gebracht und für 15 h dort gehalten. Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch in 200 mL Wasser verrührt. Der entstehende Niederschlag wird abgesaugt und getrocknet. Der verbleibende Rückstand wird mit Cyclohexan : Essigsäureethylester = 1:1 als Laufmittel an Kieselgel chromatographiert. Nach dem Einengen des Eluates erhält man 0,20 g (48 % der Theorie)
- 15 an N-{3,5-Difluor-4'-[(methoxyimino)methyl]-1,1'-biphenyl-2-yl}-5-fluor-1,3-dimethyl-1H-pyrazol-4-carboxamid in Form eines Feststoffes mit einem Schmelzpunkt von 164 bis 167°C.

Beispiel 3**Verfahren (c):**

- 5 Zu einem Gemisch aus 0,71 g (2 mmol) 5-Fluoro-1,3-dimethyl-N-[2-(4,4,5,5-tetra-
methyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)phenyl]-1H-pyrazol-4-carboxamid, 1,39 g (6 mmol)
4-Brom-2-fluorbenzaldehyde-O-methyloxim, 0,03 g (0,05 mmol) PdCl₂(dppf) und
40 mL Dimethylsulfoxid werden bei Raumtemperatur 1,28 g (12 mmol) Natrium-
10 carbonat, gelöst in 6 mL Wasser, zugegeben. Das Reaktionsgemisch wird 15 Stunden
bei 80°C gerührt.

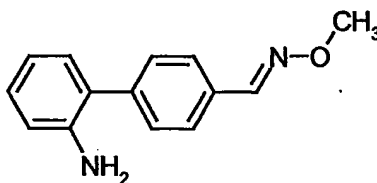
- Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch in 400 ml Wasser verrührt, der Nieder-
schlag abgesaugt und getrocknet. Das Rohprodukt wird anschließend an Kieselgel
mit Cyclohexan : Essigester = 1 : 1 als Laufmittel säulenchromatographisch gerei-
15 nigt. Nach dem Einengen erhält man 0,11 g (14 % d. Th.) an 5-Fluoro-N-{3'-fluoro-
4'-[(methoxyimino)methyl]-1,1'-biphenyl-2-yl}-1,3-dimethyl-1H-pyrazol-4-carbox-
amid als Kristalle mit einem Schmelzpunkt von 158 bis 161°C.

Beispiel 4

Verfahren (d):

- 5 Ein Gemisch aus 1,0 g (0,0028 Mol) N-(4'-Acetyl-1,1'-biphenyl-2-yl)-5-fluor-1,3-dimethyl-1H-pyrazol-4-carboxamid, 0,30 g (0,0036 Mol) O-Methylhydroxylaminhydrochlorid, 0,30 g (0,0036 Mol) Natriumacetat und 6 mL Methanol wird 12 h bei Raumtemperatur gerührt. Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch in Wasser verrührt, der entstehende Niederschlag abgesaugt, mit Wasser und anschließend
- 10 wenig Diisopropylether gewaschen und getrocknet. Man erhält 0,91 g (85,4 % der Theorie) an 5-Fluoro-N-[4'-(N-methoxyethanimidoyl)-1,1'-biphenyl-2-yl]-1,3-dimethyl-1H-pyrazol-4-carboxamid vom Schmelzpunkt 153°C.

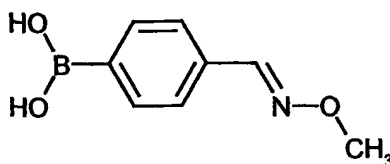
¹H-NMR-Spektrum (DMSO/TMS): δ = 3,60 ppm.

Herstellung von Ausgangssubstanzen

Verfahren (g):

5 Ein Gemisch aus 2,9 g (0,017 Mol) 2-Bromanilin, 0,68 g Tetrakis-(triphenylphosphin) palladium, 5,5 g (0,031 Mol) 4-[(Methoxyimino)methyl]phenylboronsäure und 40 mL 1,2-Dimethoxyethan wird bei Raumtemperatur mit einer Lösung von 8,2 g (0,077 Mol) Natriumcarbonat in 35 mL Wasser versetzt. Das Reaktionsgemisch wird
10 anschließend auf Rückfluss-Temperatur gebracht und für 12 h gekocht. Zur Aufarbeitung wird auf Raumtemperatur abgekühlt und mit Diethylether extrahiert. Die organische Phase wird abgetrennt und mit Wasser versetzt. Die organische Phase wird erneut abgetrennt, über Natriumsulfat getrocknet und schließlich unter vermindertem Druck eingeeengt. Der verbleibende Rückstand wird mit Cyclohexan : Essigsäureethylester = 3:1 als Laufmittel an Kieselgel chromatographiert. Nach dem Einengen des Eluates erhält man 3,8 g (98,8 % der Theorie bezogen auf 2-Bromanilin) an 2'-Amino-1,1'-biphenyl-4-carbaldehyd-O-methyloxim in Form eines Öles.

¹H-NMR-Spektrum (DMSO/TMS): $\delta = 3,90$ (3H) ppm.

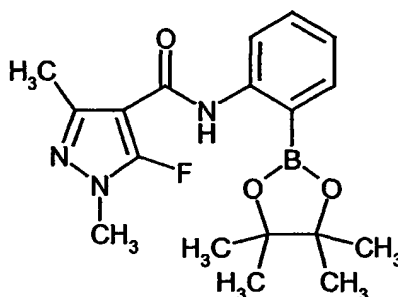


20

Verfahren (i):

Ein Gemisch aus 5,0 g (0,033 Mol) 4-Formylphenylboronsäure, 3,4 g (0,041 Mol) O-Methylhydroxylamin-hydrochlorid, 3,4 g (0,041 Mol) Natriumacetat, 40 mL
25 Methanol und 10 mL Wasser werden 12 h bei Raumtemperatur gerührt. Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch in Wasser verrührt, der entstehende Niederschlag

abgesaugt, mit Wasser gewaschen und bei 50°C im Vakuum getrocknet. Man erhält 5,56 g (93,1 % der Theorie) an 4-[(Methoxyimino)methyl]phenylboronsäure als farblose Kristalle mit einem Schmelzpunkt von 199 bis 200°C.



5

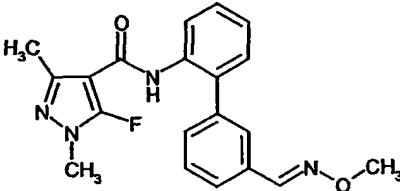
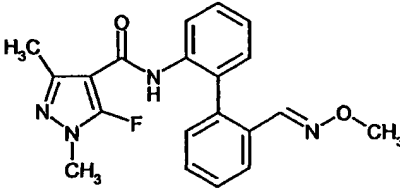
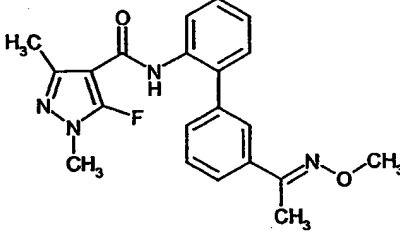
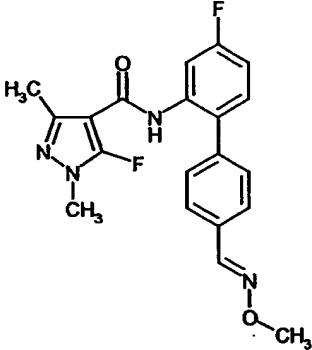
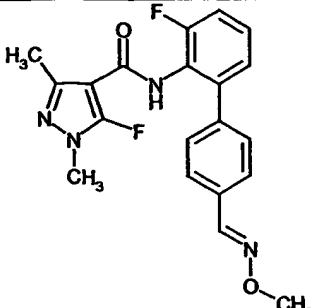
Verfahren (j):

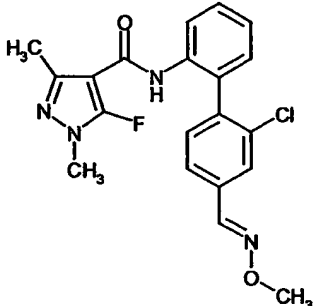
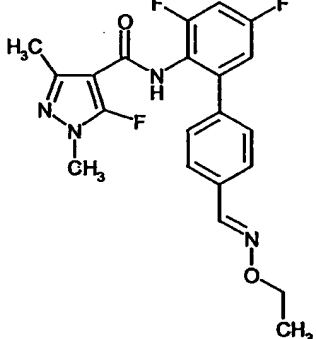
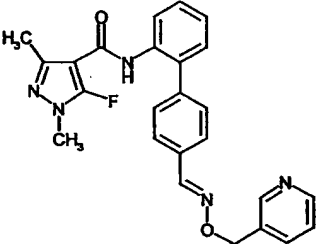
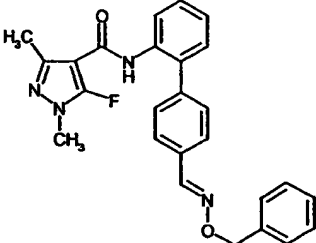
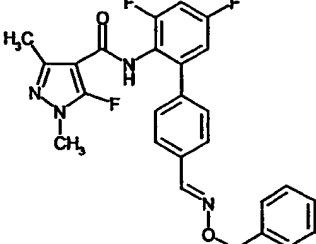
10 Zu einem Gemisch aus 0,39 g (1,5 mmol) 2-(4,4,5,5-Tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)anilin-hydrochlorid und 20 mL Acetonitril werden 0,55 g (4 mmol) Kaliumcarbonat und 0,30 g (0,0017 Mol) 5-Fluor-1,3-dimethyl-1H-pyrazol-4-carbonylchlorid bei Raumtemperatur zugegeben. Das Reaktionsgemisch wird 20 h bei Raumtemperatur gerührt.

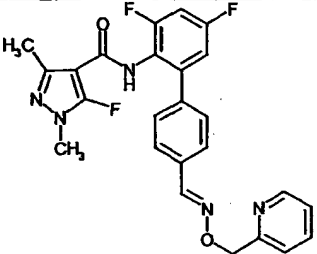
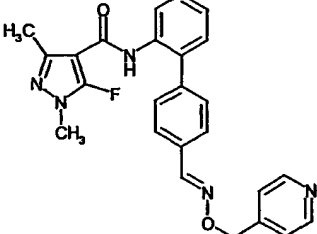
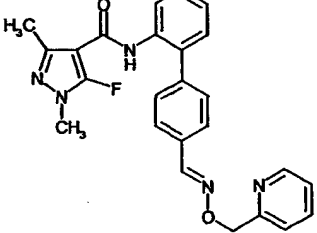
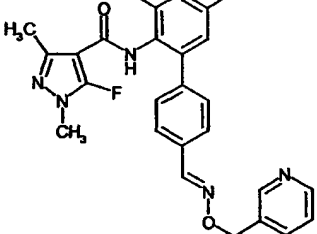
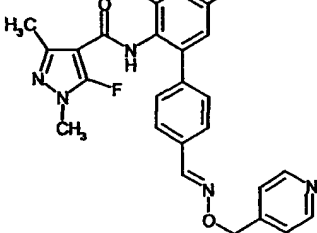
15 Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch in 150 mL Wasser verrührt, mit Essigsäureethylester extrahiert und über Natriumsulfat getrocknet. Die organische Phase wird unter vermindertem Druck eingeeengt und der feste Rückstand in Diisopropylether verrührt. Man erhält 0,25 g (46 % d. Th.) 5-Fluor-1,3-dimethyl-N-[2-(4,4,5,5-tetramethyl-1,3,2-dioxaborolan-2-yl)phenyl]-1H-pyrazol-4-carboxamid in Form von
20 Kristallen vom Schmelzpunkt 100 bis 103°C

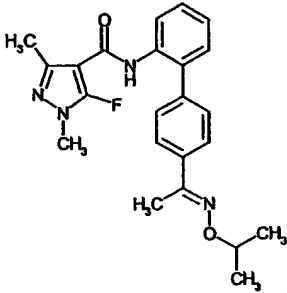
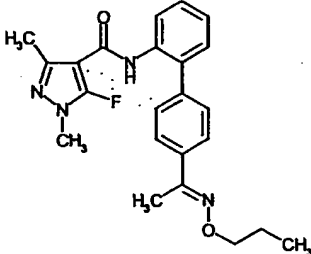
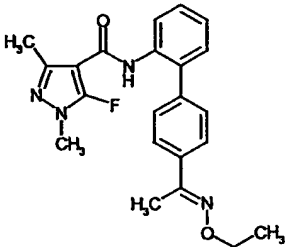
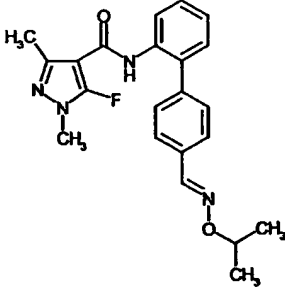
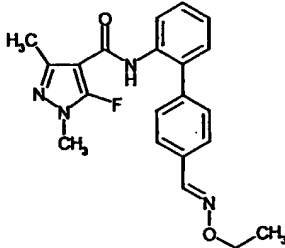
Nach den zuvor beschriebenen Methoden werden auch die in der folgenden Tabelle aufgeführten Biphenylcarboxamide der Formel (I) hergestellt.

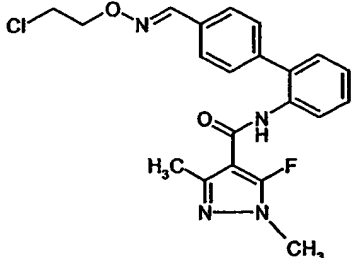
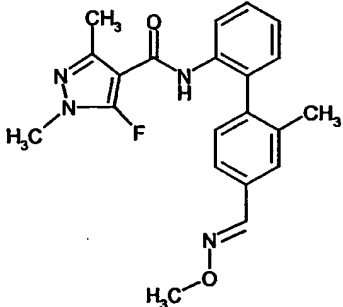
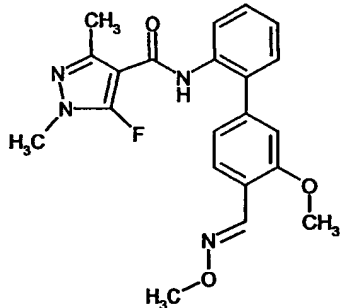
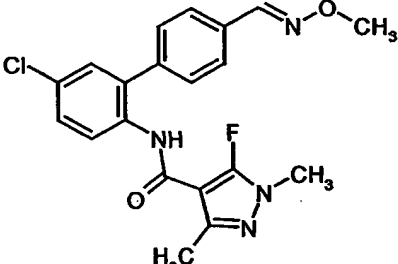
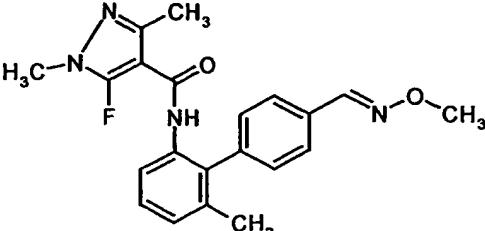
Tabelle 1

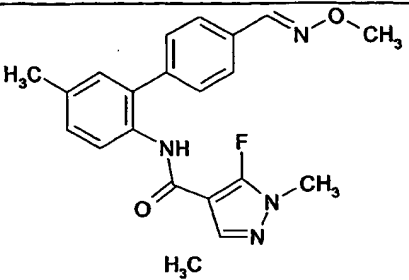
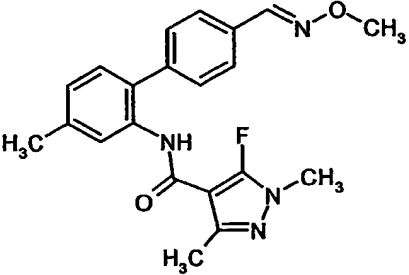
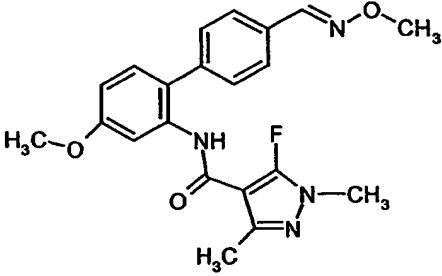
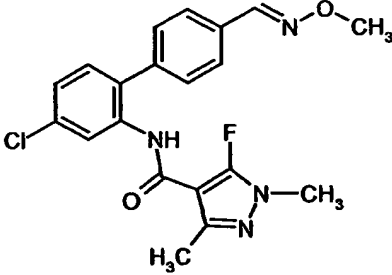
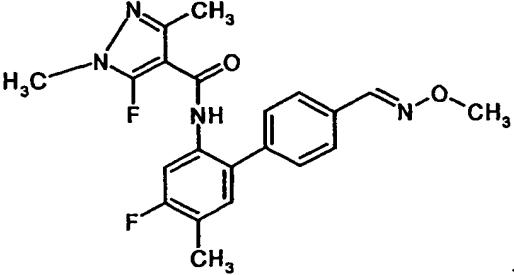
Bsp.- Nr.	Verbindung	Physikal. Konstante
5		Fp. 122-125°C
6		Fp. 144-145°C
7		logP 3,20 ^{a)}
8		logP 3,39 ^{a)}
9		logP 2,51 ^{a)}

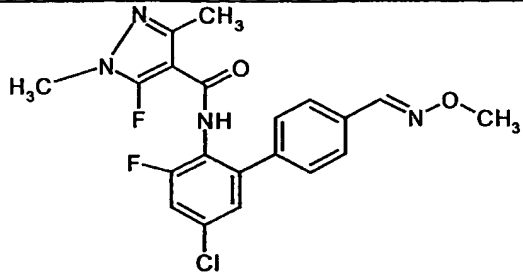
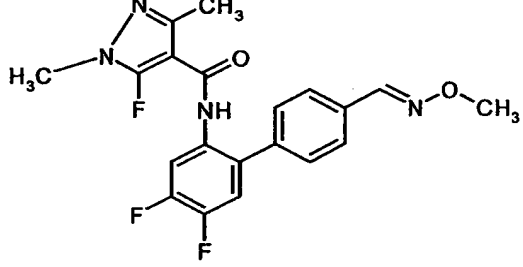
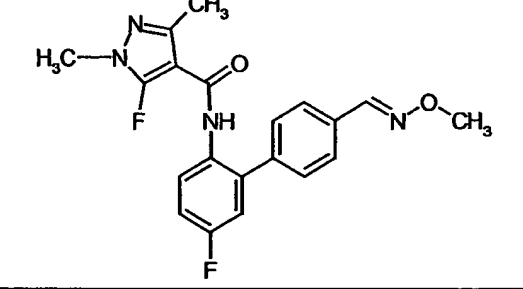
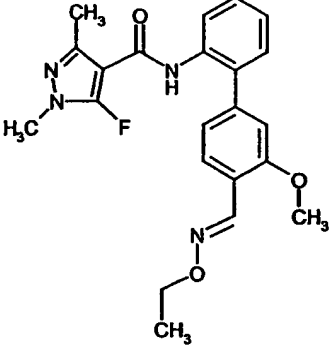
Bsp.- Nr.	Verbindung	Physikal. Konstante
10		logP 3,26 ^{a)}
11		logP 3,05 ^{a)}
12		logP 1,75 ^{a)}
13		logP 4,02 ^{a)}
14		logP 3,68 ^{b)}

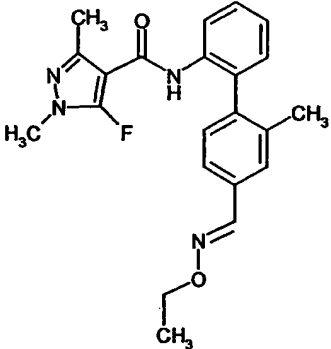
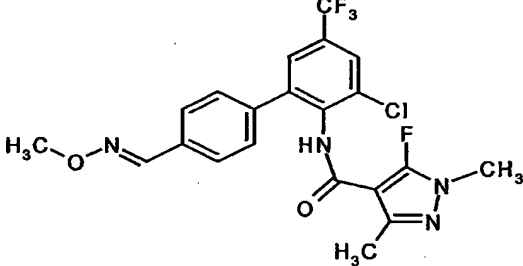
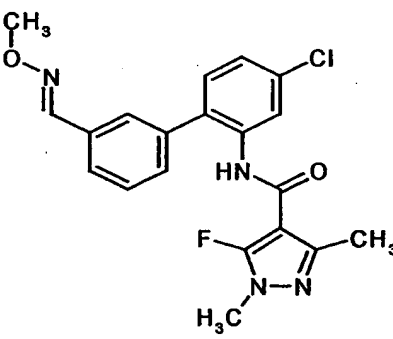
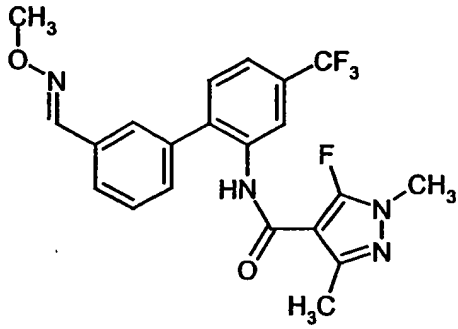
Bsp.- Nr.	Verbindung	Physikal. Konstante
15		logP 1,81 ^{a)}
16		logP 1,72 ^{a)}
17		logP 1,89 ^{a)}
18		logP 1,69 ^{a)}
19		logP 1,60 ^{a)}

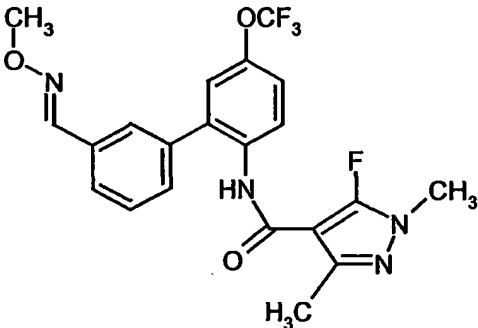
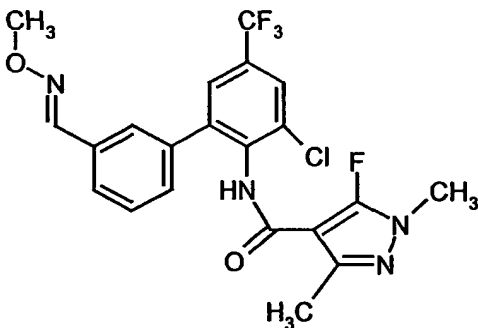
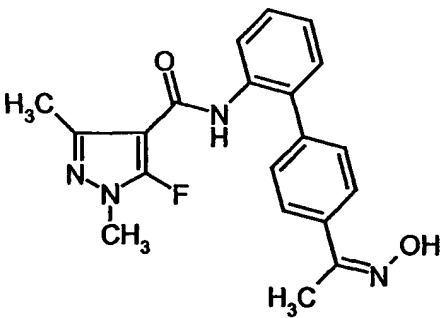
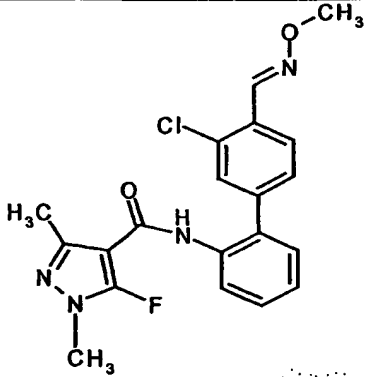
Bsp.- Nr.	Verbindung	Physikal. Konstante
20		Fp. 115-117°C
21		Fp. 124-126°C
22		Fp. 115-117°C
23		Fp. 115-117°C
24		Fp. 102-104°C

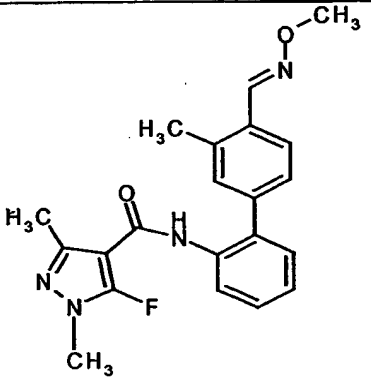
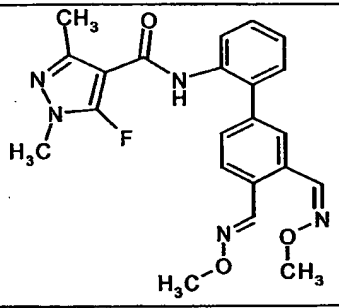
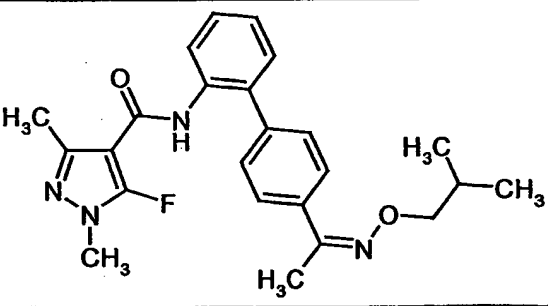
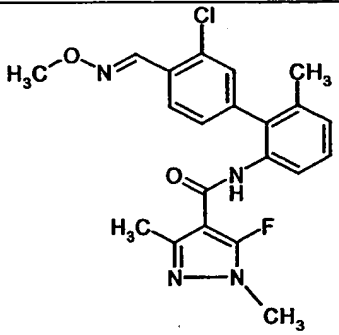
Bsp.- Nr.	Verbindung	Physikal. Konstante
25		logP 3,38 ^{a)}
26		logP 3,40 ^{a)}
27		logP 3,15 ^{a)}
28		logP 3,67 ^{a)}
29		logP 3,39 ^{a)}

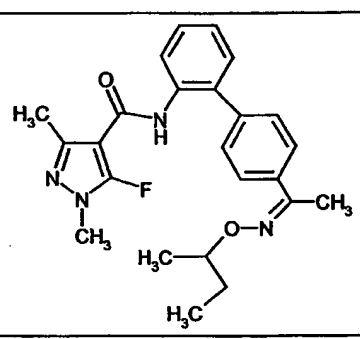
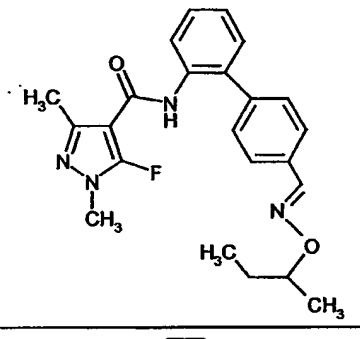
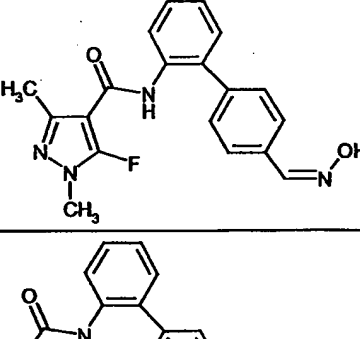
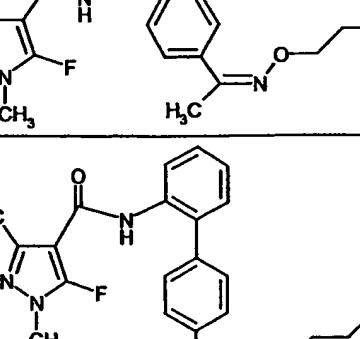
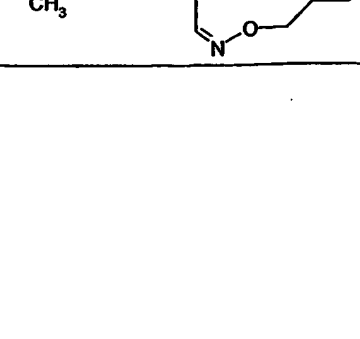
Bsp.- Nr.	Verbindung	Physikal. Konstante
30		logP 3,27 ^{a)}
31		logP 3,34 ^{a)}
32		logP 3,10 ^{a)}
33		logP 3,79 ^{a)}
34		logP 3,74 ^{a)}

Bsp.- Nr.	Verbindung	Physikal. Konstante
35		logP 3,11 ^{a)}
36		logP 3,48 ^{a)}
37		logP 3,01 ^{a)}
38		logP 3,58 ^{a)}

Bsp.- Nr.	Verbindung	Physikal. Konstante
39		logP 3,91 ^{a)}
40		logP 4,63 ^{a)}
41		logP 3,89 ^{a)}
42		logP 4,09 ^{a)}

Bsp.- Nr.	Verbindung	Physikal. Konstante
43		logP 4,06 ^{a)}
44		logP 4,63 ^{a)}
45		Fp. 147-149°C
46		logP 3,47 ^{a)}

Bsp.- Nr.	Verbindung	Physikal. Konstante
47		logP 3,30 ^{a)}
48		logP 3,25 ^{a)}
49		
50		logP 3,89 ^{a)}

Bsp.- Nr.	Verbindung	Physikal. Konstante
51		logP 4,67 ^{a)}
52		
53		logP 2,24 ^{a)}
54		Fp. 97-99°C
55		logP 4,33 ^{a)}

Die Bestimmung der in den voranstehenden Tabellen und Herstellungsbeispielen angegebenen logP-Werte erfolgt gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.A8 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C 18). Temperatur: 43°C.

5

Die Bestimmung erfolgt im sauren Bereich bei pH 2.3 mit 0,1% wässriger Phosphorsäure und Acetonitril als Eluenten; linearer Gradient von 10% Acetonitril bis 90% Acetonitril (in der Tabelle mit ^{a)} markiert).

10

Die Bestimmung erfolgt im neutralen Bereich bei pH 7.5 mit 0,01-molare wässriger Phosphatpuffer-Lösung und Acetonitril als Eluenten; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril (in der Tabelle mit ^{b)} markiert).

15

Die Eichung erfolgt mit unverzweigten Alkan-2-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren logP-Werte bekannt sind (Bestimmung der logP-Werte anhand der Retentionszeiten durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).

20

Die lambda-max-Werte wurden an Hand der UV-Spektren von 200 nm bis 400 nm in den Maxima der chromatographischen Signale ermittelt.

Anwendungsbeispiele

Beispiel A

5 Podosphaera-Test (Apfel) / protektiv

Lösungsmittel: 24,5 Gewichtsteile Aceton
 24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid
Emulgator: 1,0 Gewichtsteile Alkyl-Aryl-Polyglykoether

10

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension des Apfelmehltauerregers *Podosphaera leucotricha* inokuliert. Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 23°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 70 % auf-

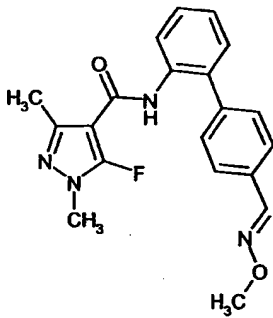
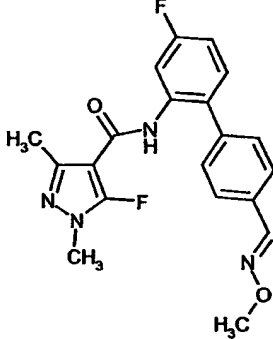
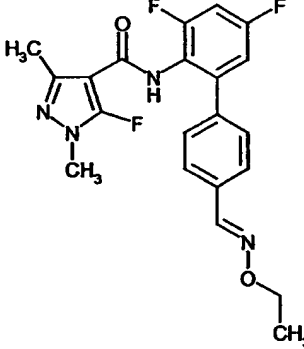
20 stellt.

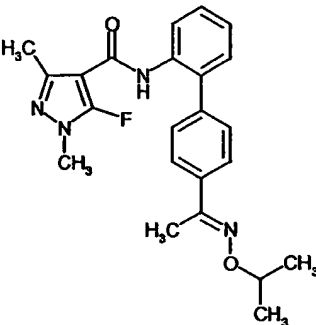
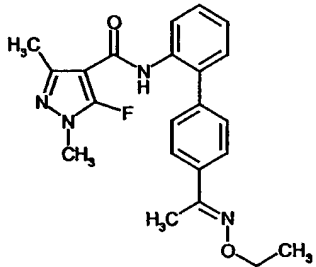
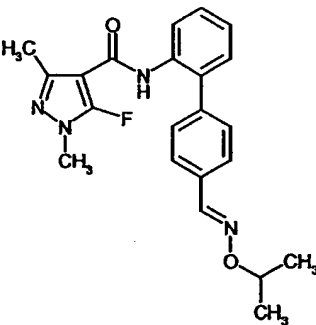
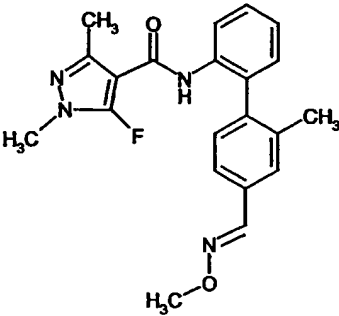
10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

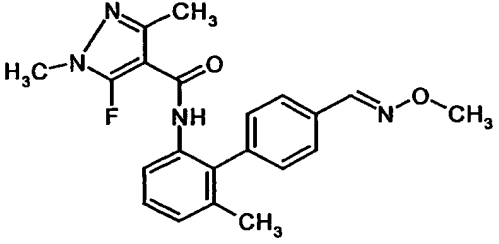
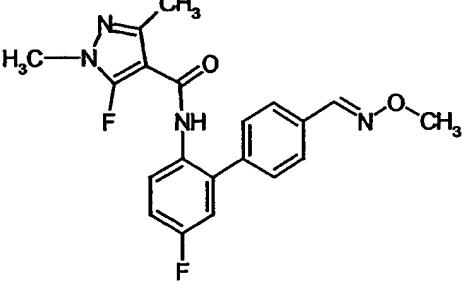
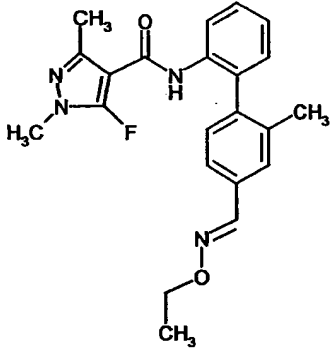
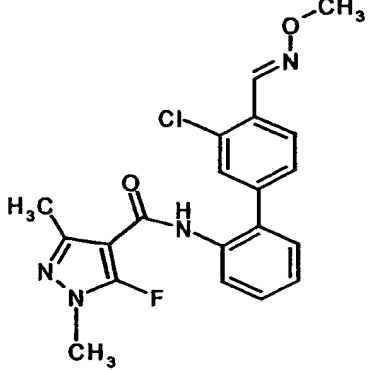
25

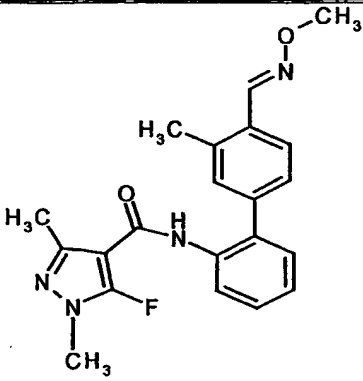
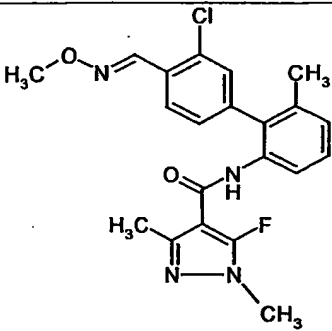
Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

Tabelle A: Podosphaera-Test (Apfel) / protektiv

Wirkstoff	Aufwand- menge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-1) 	100	100
(I-8) 	100	98
(I-11) 	100	100

Wirkstoff	Aufwand- menge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-20)		100
(I-22)		100
(I-23)		100
(I-26)		100

Wirkstoff		Aufwand- menge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-29)		100	94
(I-37)		100	100
(I-39)		100	100
(I-46)		100	100

Wirkstoff	Aufwand- menge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-47) 	100	100
(I-50) 	100	100

Beispiel B**Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv**

- 5 Lösungsmittel: 24,5 Gewichtsteile Aceton
 24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid
Emulgator: 1,0 Gewichtsteile Alkyl-Aryl-Polyglykoether

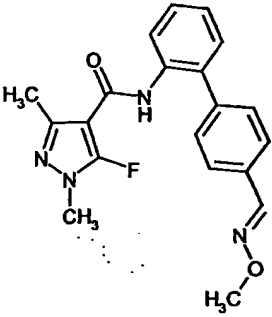
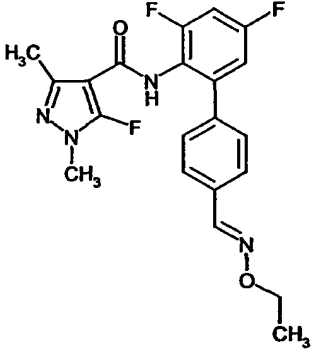
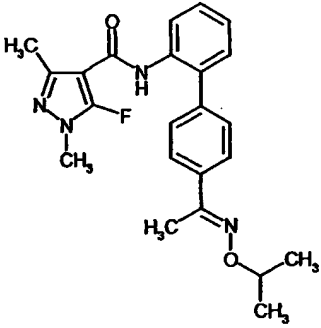
10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man
1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulga-
tor und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

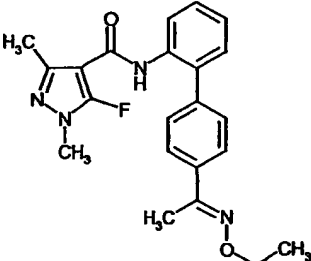
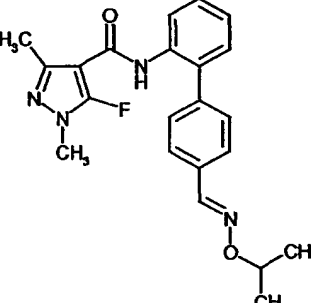
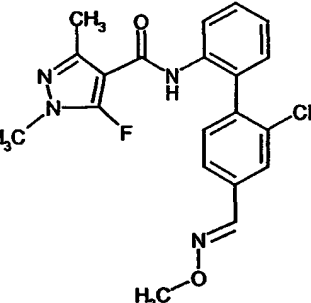
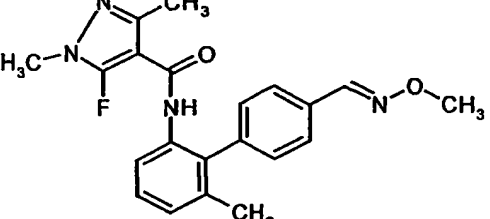
15 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoff-
zubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des
Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension von Sphae-
rotheca fuliginea inokuliert. Die Pflanzen werden dann bei ca. 23°C und einer rela-
tiven Luftfeuchtigkeit von ca. 70 % im Gewächshaus aufgestellt.

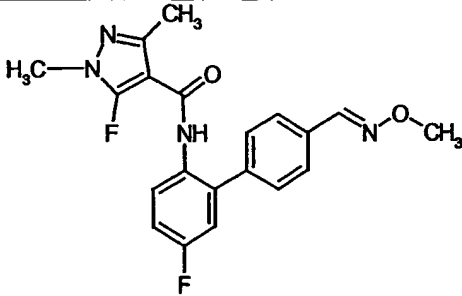
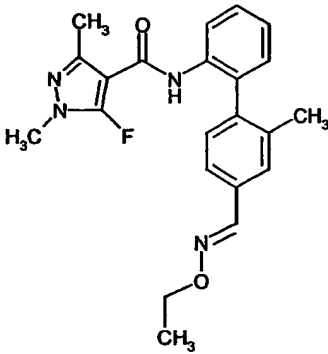
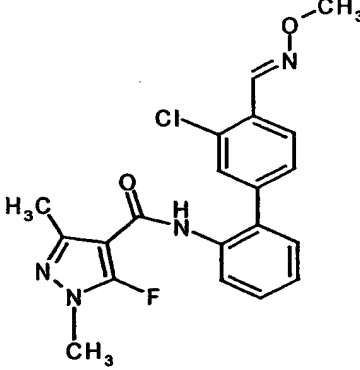
20 10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein
Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad
von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

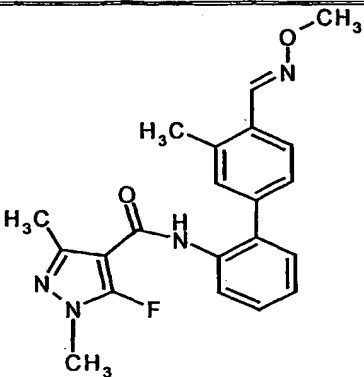
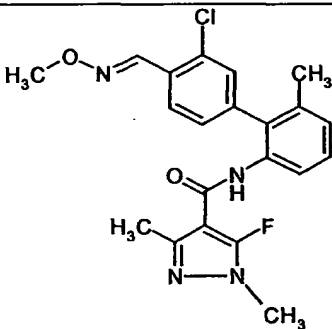
Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der
Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

Tabelle B: Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

Wirkstoff		Aufwand- menge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-1)		100	100
(I-11)		100	93
(I-20)		100	77

Wirkstoff	Aufwand- menge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-22)		100
(I-23)		100
(I-26)		100
(I-29)		100

Wirkstoff		Aufwand- menge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-37)		100	77
(I-39)		100	97
(I-46)		100	100

Wirkstoff		Aufwand- menge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-47)		100	100
(I-50)		100	100

Beispiel C**Venturia - Test (Apfel) / protektiv**

- 5 Lösungsmittel: 24,5 Gewichtsteile Aceton
 24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid
Emulgator: 1,0 Gewichtsteile Alkyl-Aryl-Polyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

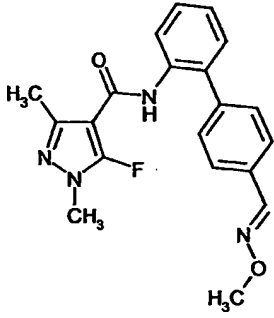
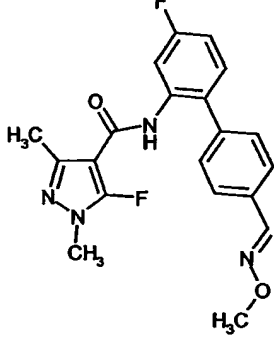
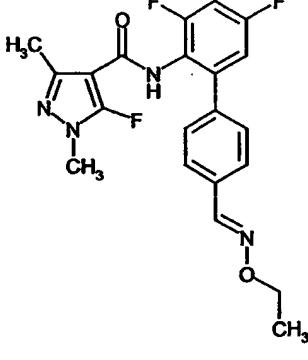
15 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Konidiensuspension des Apfelschorferregers *Venturia inaequalis* inokuliert und verbleiben dann 1 Tag bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

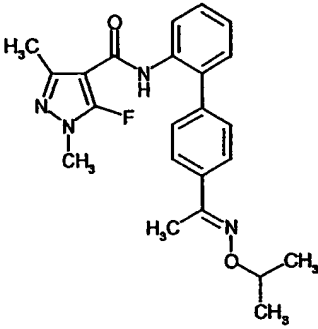
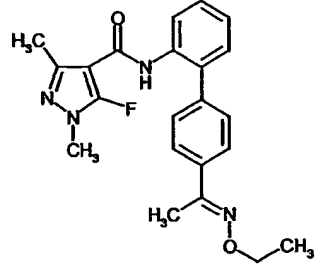
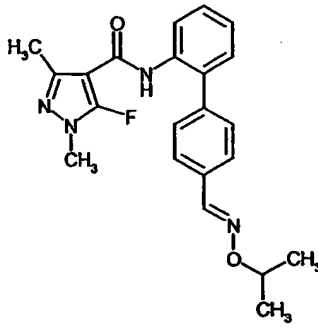
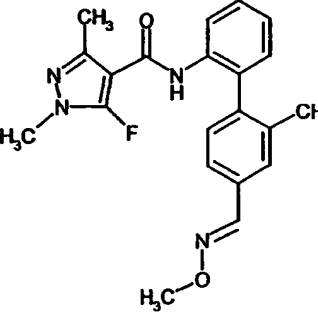
20 Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 21°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 90 % aufgestellt.

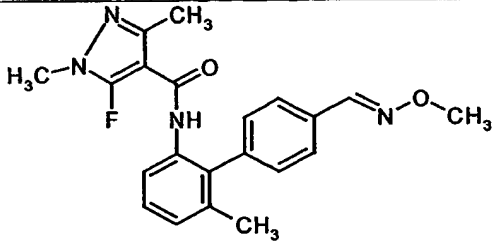
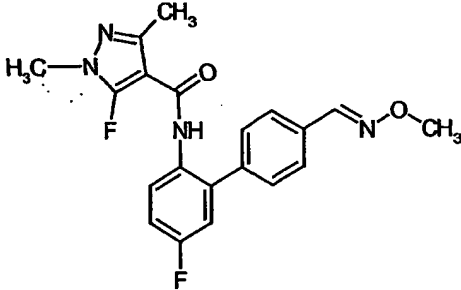
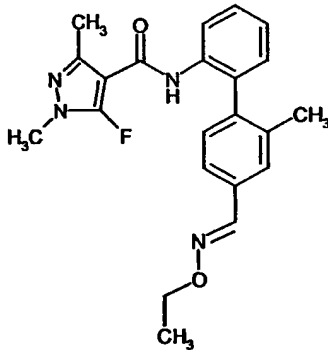
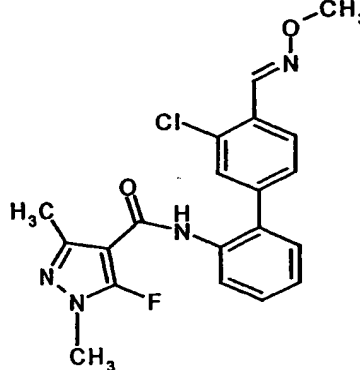
25 12 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

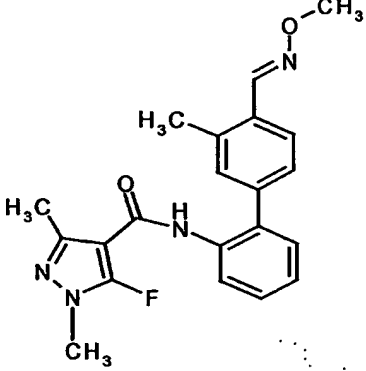
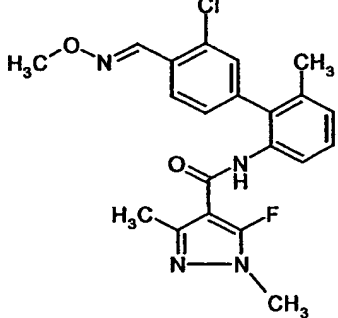
Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

Tabelle C: Venturia - Test (Apfel) / protektiv

Wirkstoff	Aufwand- menge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-1) 	100	100
(I-8) 	100	99
(I-11) 	100	100

Wirkstoff		Aufwand- menge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-20)		100	100
(I-22)		100	100
(I-23)		100	100
(I-26)		100	100

Wirkstoff		Aufwand- menge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-29)		100	100
(I-37)		100	100
(I-39)		100	100
(I-46)		100	100

Wirkstoff		Aufwand- menge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-47)		100	100
(I-50)		100	100

Beispiel D**Puccinia-Test (Weizen) / protektiv**

- 5 Lösungsmittel: 25 Gewichtsteile N,N-Dimethylacetamid
Emulgator: 0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

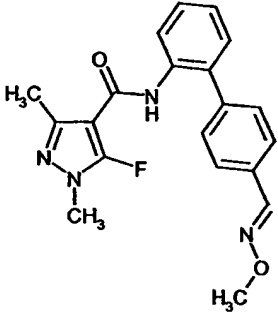
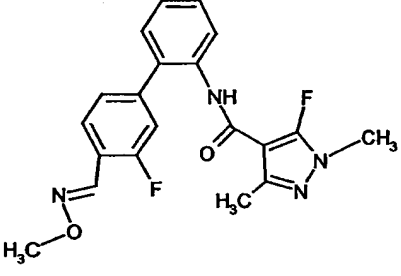
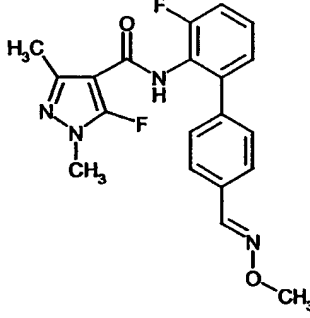
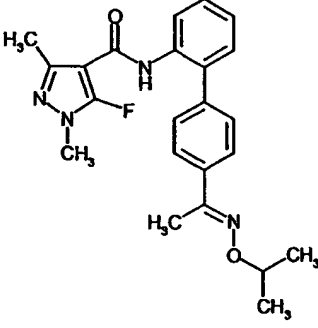
15 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer Konidiensuspension von *Puccinia recondita* besprüht. Die Pflanzen verbleiben 48 Stunden bei 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

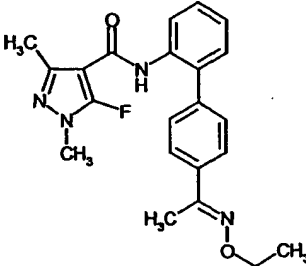
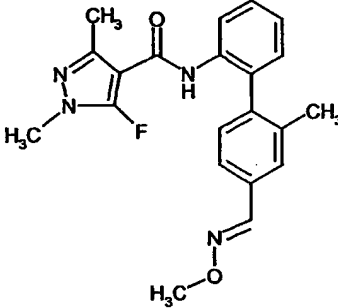
20 Die Pflanzen werden dann in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von Rostpusteln zu begünstigen.

25 10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

Tabelle D: Puccinia-Test (Weizen) / protektiv

Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	% Wirkungsgrad
(I-1)		250	100
(I-3)		250	100
(I-9)		250	100
(I-20)		250	100

Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	% Wirkungsgrad
(I-22)	 <chem>CC1=CN(C)C(F)=C1C(=O)Nc2ccccc2-c3ccc(CN=C)cc3OCC</chem>	250	100
(I-26)	 <chem>CC1=CN(C)C(F)=C1C(=O)Nc2ccccc2-c3ccc(C)cc3N=COC</chem>	250	100

Beispiel E**Alternaria-Test (Tomate) / protektiv**

- 5 Lösungsmittel: 49 Gewichtsteile N,N-Dimethylformamid
Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykoether

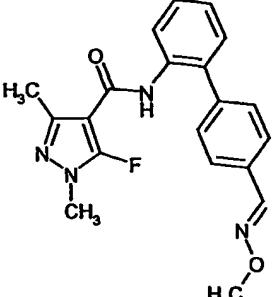
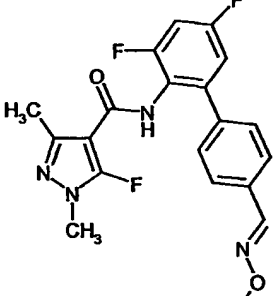
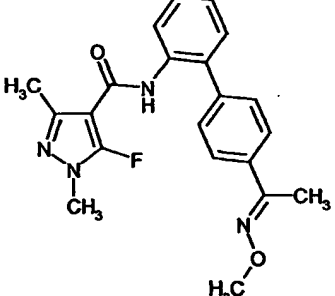
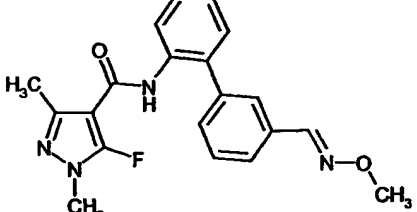
10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

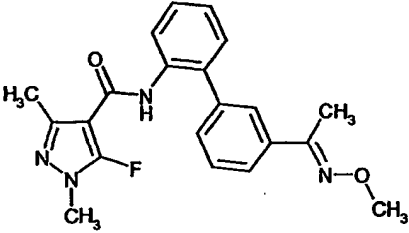
15 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit bespritzt man junge Tomatenpflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge. 1 Tag nach der Behandlung werden die Pflanzen mit einer Sporensuspension von *Alternaria solani* inokuliert und stehen dann 24 h bei 100 % rel. Feuchte und 20°C. Anschließend stehen die Pflanzen bei 96% rel. Luftfeuchtigkeit und einer Temperatur von 20°C.

20 7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

Tabelle E: Alternaria-Test (Tomate) / protektiv

Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	% Wirkungsgrad
(I-1)		750	95
(I-2)		750	90
(I-4)		750	90
(I-5)		750	90

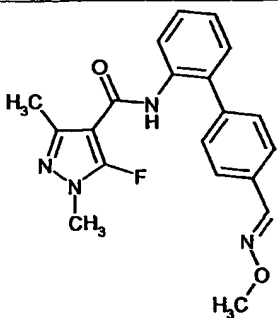
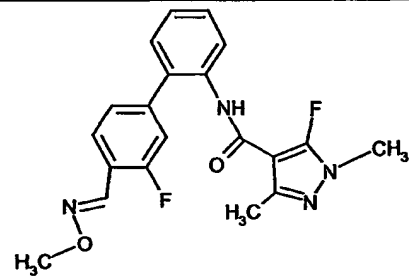
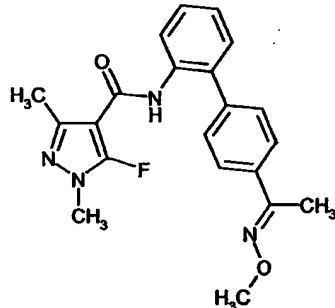
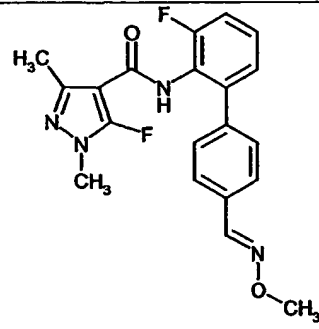
Wirkstoff	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	% Wirkungsgrad
(I-7) 	750	100

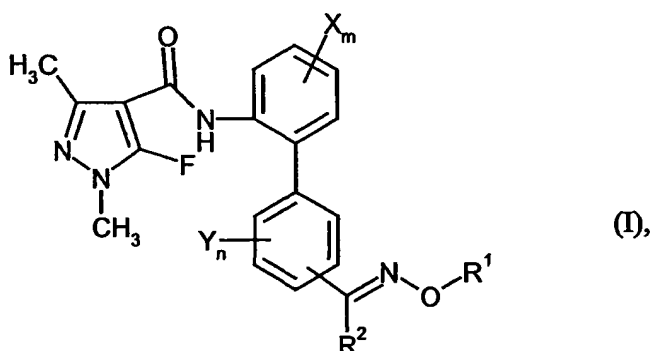
Beispiel F**Hemmtest an Riesenkolonien von Basidiomyceten**

- 5 Aus Kolonien von *Gloeophyllum trabeum*, *Coniophora puteana*, *Poria placenta*, *Lentinus tigrinus* und *Coriolus versicolor* wurden Myzelstücke ausgestochen und auf einem Malzextrakt-Pepton-haltigen Agarnährboden bei 26°C inkubiert. Die Hemmung des Hyphenwachstums auf wirkstoffhaltigen Nährböden wurde mit dem Längenwachstum auf Nährboden ohne Wirkstoffzusatz verglichen und als
- 10 prozentuale Hemmung bonitiert.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele gute Wirksamkeit:

Tabelle F: Hemmtest an Riesenkolonien von Basidiomyceten

Wirkstoff	Aufwandmenge an Wirkstoff in ppm	% Wirkungsgrad
(I-1) 	6	100
(I-3) 	6	100
(I-4) 	6	100
(I-9) 	6	100

Patentansprüche**1. Pyrazolylbiphenylcarboxamide der Formel (I)**

in welcher

R^1 für Wasserstoff, C_1 - C_6 -Alkyl, C_1 - C_6 -Halogenalkyl, Benzyl oder Pyridylmethyl steht,

R^2 für Wasserstoff oder C_1 - C_6 -Alkyl steht,

X für Halogen, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C_1 - C_8 -Alkyl, C_1 - C_6 -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C_1 - C_8 -Alkoxy, C_1 - C_6 -Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C_1 - C_8 -Alkylthio, C_1 - C_6 -Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, C_2 - C_8 -Alkenyloxy, C_2 - C_8 -Alkinyloxy, C_3 - C_8 -Cycloalkyl, C_1 - C_8 -Alkoxycarbonyl oder für $-C(R^2)=N-OR^1$ steht,

m für ganze Zahlen von 0 bis 3 steht, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht,

Y für Halogen, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C_1 - C_8 -Alkyl, C_1 - C_6 -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C_1 - C_8 -Alkoxy, C_1 - C_6 -Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C_1 - C_8 -Alkylthio, C_1 - C_6 -Halo-

genalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₂-C₈-Alkenyloxy, C₂-C₈-Alkinyloxy, C₃-C₈-Cycloalkyl, C₁-C₈-Alkoxy-carbonyl oder C₁-C₆-Alkoximino-C₁-C₆-alkyl steht und

5 n für ganze Zahlen von 0 bis 4 steht, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht.

2. Pyrazolylbiphenylcarboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

10 R¹ für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Benzyl oder Pyridylmethyl steht,

 R² für Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl steht,

15 X für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₂-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, C₂-C₆-Alkenyloxy, C₂-C₆-Alkinyloxy, C₃-C₇-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl
20 oder für -C(R²)=N-OR¹ steht,

 m für ganze Zahlen von 0 bis 3 steht, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht,

25

 Y für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₂-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, C₂-C₆-
30

Alkenyloxy, C₂-C₆-Alkinyloxy, C₃-C₇-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl oder C₁-C₄-Alkoximino-C₁-C₄-alkyl steht,

n für ganze Zahlen von 0 bis 3 steht, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2 oder 3 steht.

3. Pyrazolylbiphenylcarboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

R¹ für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, i-Propyl, n-Butyl, i-Butyl, s-Butyl, t-Butyl, 2-Chlorethyl, Benzyl, 2-Pyridylmethyl, 3-Pyridylmethyl oder 4-Pyridylmethyl steht,

R² für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, i-Propyl oder n-Butyl steht,

X für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, sek.-Butyl, i-Butyl, tert.-Butyl, Trichlormethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Trifluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Allyloxy, Propargyloxy, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cycloheptyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl oder für $-C(R^2)=N-OR^1$ steht,

m für ganze Zahlen von 0 bis 2 steht, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 steht,

Y für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, sek.-Butyl, i-Butyl, tert.-Butyl, Trichlormethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Trifluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Allyloxy, Propargyloxy,

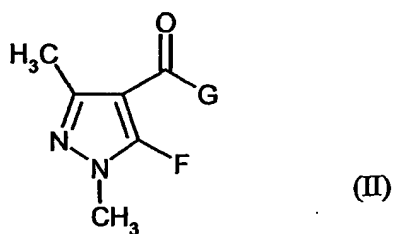
- 87 -

Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cycloheptyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl oder Methoximinomethyl steht,

n für ganze Zahlen von 0 bis 2 steht, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2 steht.

4. Verfahren zur Herstellung von Pyrazolylbiphenylcarboxamiden der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man

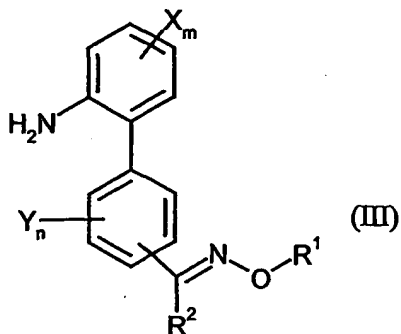
a) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)



in welcher

G für Halogen, Hydroxy oder C₁-C₆-Alkoxy steht,

mit Anilin-Derivaten der Formel (III)



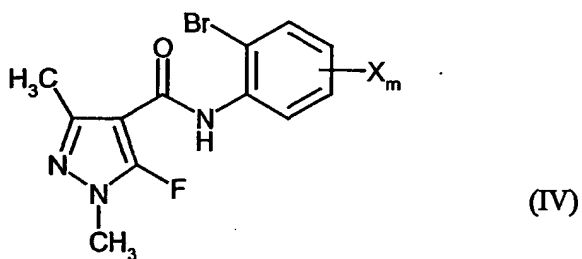
in welcher

R^1 , R^2 , X, m, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder

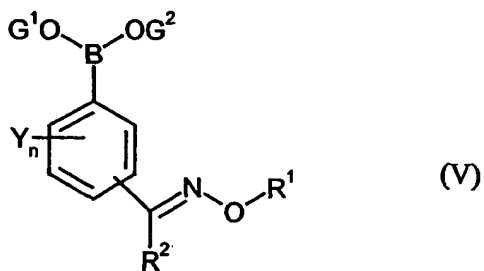
b) Carboxamid-Derivate der Formel (IV)



in welcher

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)



in welcher

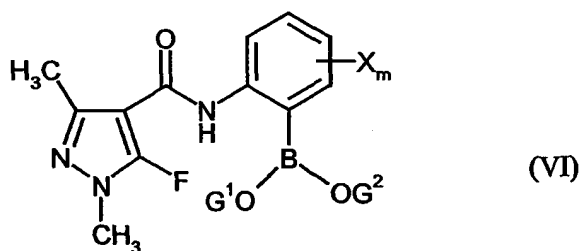
R^1 , R^2 , Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder

c) Carboxamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI)



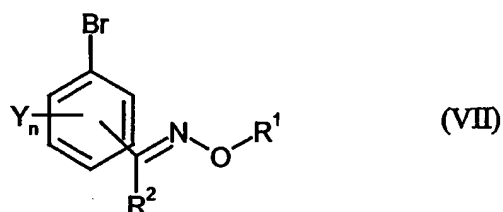
in welcher

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

- 90 -



in welcher

R^1 , R^2 , Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

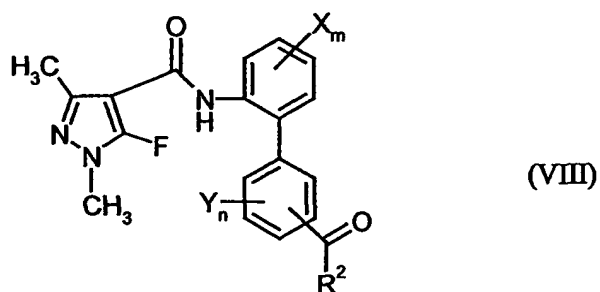
5

gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

10

oder

d) Biphenylacyl-Derivate der Formel (VIII)



15

in welcher

R^2 , X, m, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

20

mit Alkoxaminen der Formel (IX)



- 91 -

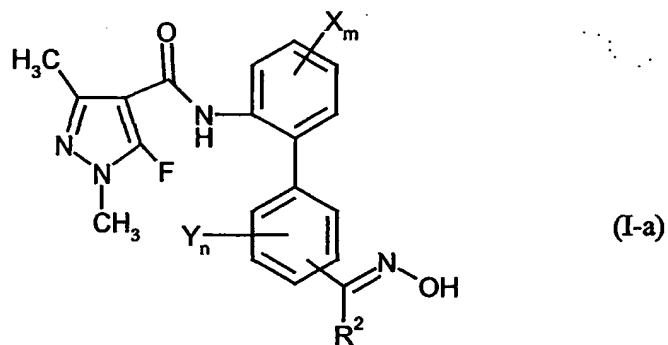
in welcher R^1 die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

5

oder

e) Hydroxylamin-Derivate der Formel (I-a)



10

in welcher

R^2 , X, m, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

15

mit Verbindungen der Formel (X)



20

in welcher

R^3 für C_1 - C_6 -Alkyl steht und

E für Chlor, Brom, Iod, Methansulfonyl oder p-Toluolsulfonyl steht,

25

- 92 -

oder

R^3 und E zusammen für (Di- C_1 - C_6 -alkyl)sulfat stehen,

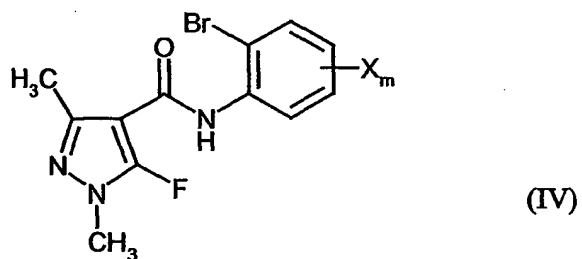
5

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder

10

f) Carboxamid-Derivate der Formel (IV)

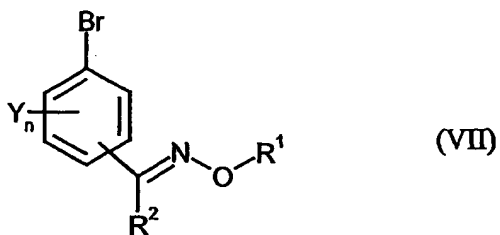


in welcher

15

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)



20

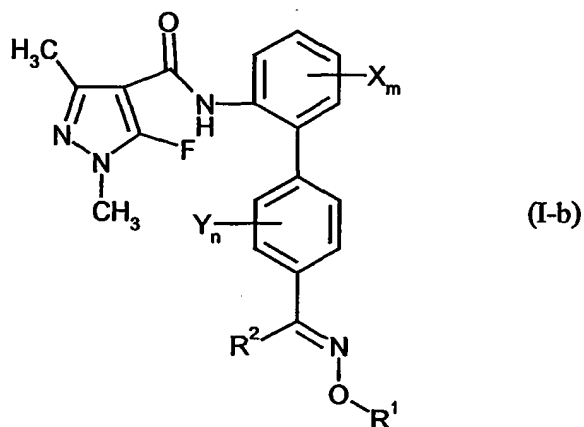
in welcher

R^1 , R^2 , Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

in Gegenwart eines Palladium- oder Platin-Katalysators und in Gegenwart von 4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

5

5. Pyrazolylbiphenylcarboxamide der Formel (I-b)

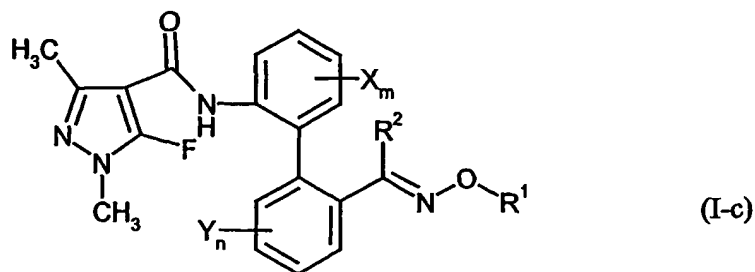


10

in welcher

R^1 , R^2 , X, m, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

15 6. Pyrazolylbiphenylcarboxamide der Formel (I-c)

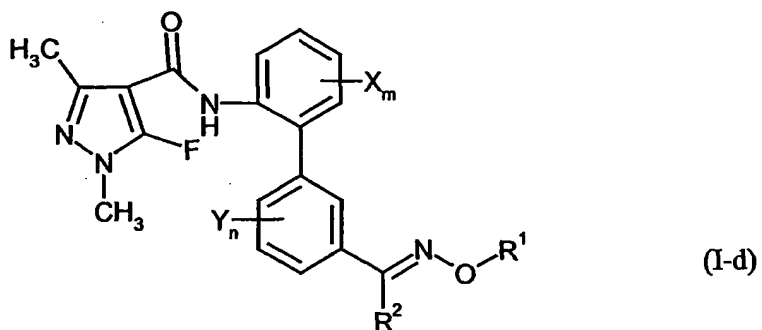


- 94 -

in welcher

R^1 , R^2 , X, m, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

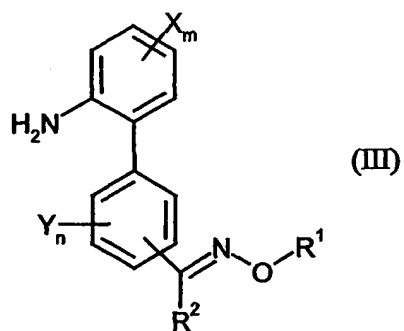
- 5 7. Pyrazolylbiphenylcarboxamide der Formel (I-d)



in welcher

- 10 R^1 , R^2 , X, m, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

8. Anilin-Derivate der Formel (III)

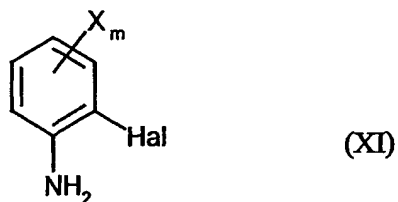


- 15 in welcher

R^1 , R^2 , X, m, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

9. Verfahren zur Herstellung von Anilin-Derivaten der Formel (III) gemäß Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass man

g) 2-Halogenanilin-Derivate der allgemeinen Formel (XI)



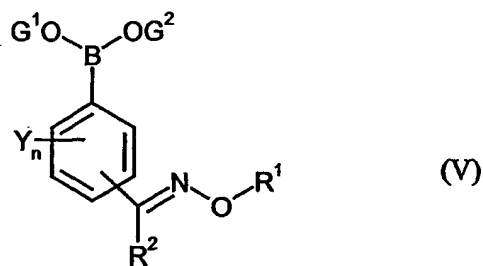
in welcher

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

10

Hal für Halogen steht,

mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)



in welcher R¹, R², Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

20

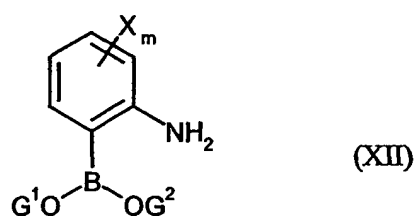
G¹ und G² jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

- 96 -

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umgesetzt

5 oder

h) Anilinboronsäuren der Formel (XII)

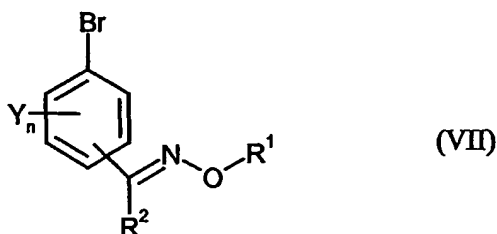


10 in welcher

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

15 G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)



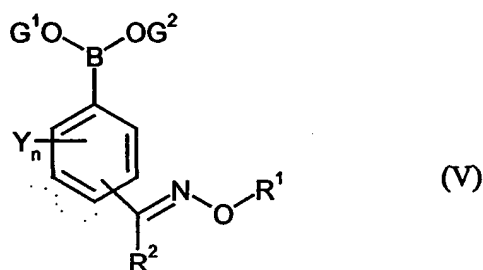
20

in welcher R^1 , R^2 , Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

- 97 -

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umgesetzt.

5 10. Boronsäure-Derivaten der Formel (V)



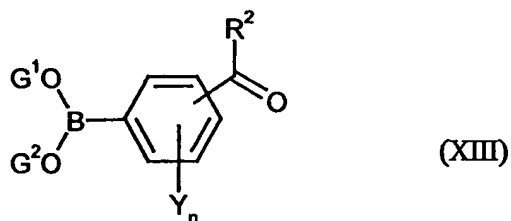
in welcher

10 R^1 , R^2 , Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen.

15 11. Verfahren zur Herstellung von Boronsäure-Derivaten der Formel (V) gemäß Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, dass man

i) Phenylboronsäuren der Formel (XIII)



20

in welcher

R^2 , Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

- 98 -

G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

5 mit Alkoxaminen der Formel (IX)



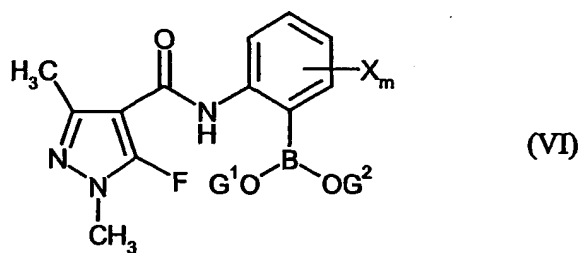
in welcher

10 R^1 die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umgesetzt.

15

12. Carboxamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI)



20 in welcher

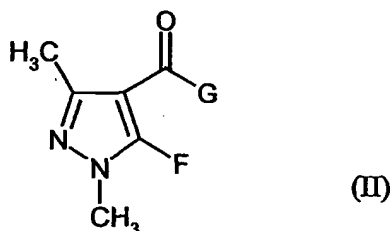
X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen.

25

13. Verfahren zur Herstellung von Carboxamid-Boronsäure-Derivaten der Formel (VI) gemäß Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, dass man

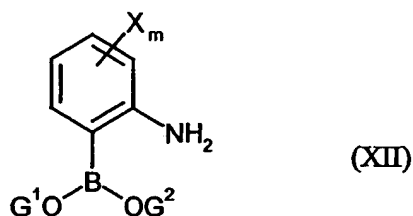
j) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)



in welcher

G die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat,

mit Anilinboronsäuren der Formel (XII)



in welcher

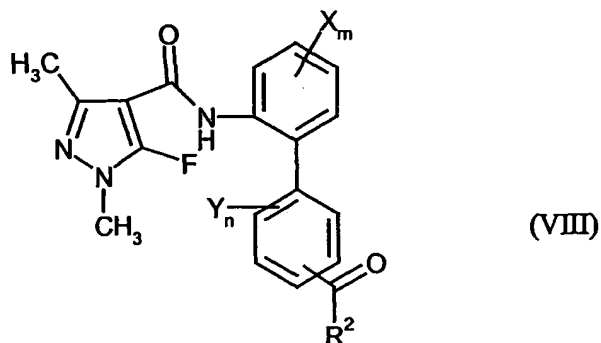
X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

G¹ und G² jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umgesetzt.

- 100 -

14. Biphenylacetyl-Derivate der Formel (VIII)

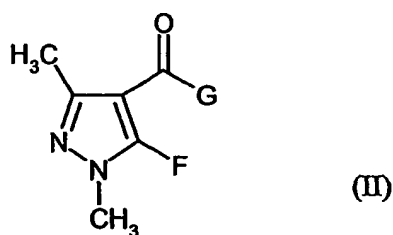


5 in welcher

R^2 , X, m, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

15. Verfahren zur Herstellung von Biphenylacetyl-Derivaten der Formel (VIII)
 10 gemäß Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, dass man

k) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)



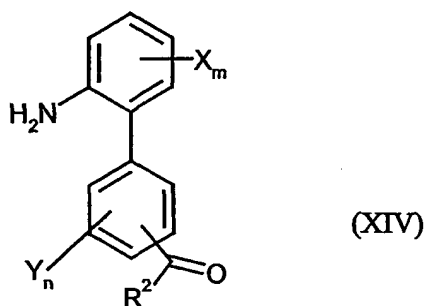
15 in welcher

G die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat,

mit 2-Benzaldehyd-anilin-Derivaten der Formel (XIV)

20

- 101 -

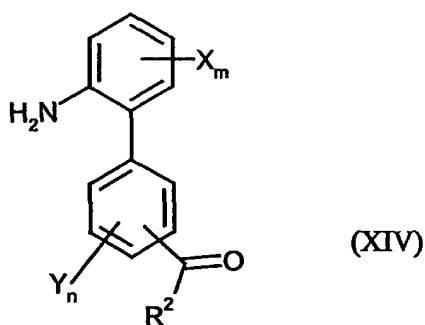


in welcher

R^2 , X, m, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels umgesetzt.

16. 2-Benzaldehyd-anilin-Derivate der Formel (XIV)



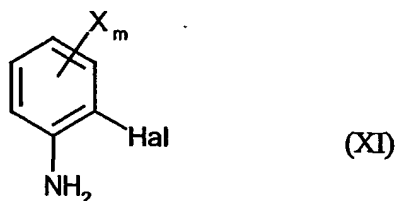
in welcher

R^2 , X, m, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

17. Verfahren zur Herstellung von 2-Benzaldehyd-anilin-Derivaten der Formel (XIV) gemäß Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, dass man

- 102 -

1) Anilin-Derivate der Formel (XI)



in welcher

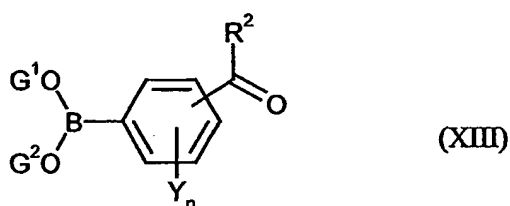
5

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

Hal für Halogen steht,

10

mit Phenylboronsäure-Derivaten der Formel (XIII)



in welcher

15

 R^2 , Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels umgesetzt.

18. Mittel zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem Pyrazolylbiphenylcarboxamid der Formel (I) gemäß Anspruch 1 neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen.
- 5
19. Verwendung von Pyrazolylbiphenylcarboxamiden der Formel (I) gemäß Anspruch 1 zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen.
20. Verfahren zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Pyrazolylbiphenylcarboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf die Mikroorganismen und/oder deren Lebensraum ausbringt.
- 10
21. Verfahren zur Herstellung von Mitteln zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Pyrazolylbiphenylcarboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen vermischt.
- 15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter al Application No

PCT/EP 01/07990

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C07D231/16 A01N43/56 C07D401/12 C07C251/48 C07C251/52
 C07D213/30 C07F5/02 C07C223/06 C07C225/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C07D C07C C07F

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, BEILSTEIN Data, WPI Data, CHEM ABS Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 00 14071 A (MAULER MACHNIK ASTRID ;KUGLER MARTIN (DE); STENZEL KLAUS (DE); BAY) 16 March 2000 (2000-03-16) cited in the application page 44 -page 51; claims 1-10 ---	1-8, 18-21
X	US 5 763 450 A (MASCIADRI RAFFAELLO ET AL) 9 June 1998 (1998-06-09) column 17, line 26 - line 32 --- -/--	10,11

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"a" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

12 October 2001

Date of mailing of the international search report

17 4 01 02

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
 NL - 2280 HV Rijswijk
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 851 epo nl,
 Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Fink, D

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter
national Application No
PCT/EP 01/07990

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DATABASE CROSSFIRE BEILSTEIN [Online] Beilstein Institut zur Förderung der Chemischen Wissenschaften, Frankfurt am Main, DE; die Verbindung mit der BRN: 3118739, XP002179759 & JOURNAL OF ORGANIC CHEMISTRY., vol. 33, no. 12, 1968, pages 4483-4486, AMERICAN CHEMICAL SOCIETY. EASTON., US ISSN: 0022-3263	10
X	--- WO 92 00273 A (BOOTS CO PLC) 9 January 1992 (1992-01-09) Seite 14; die Verbindungen der allgemeinen Formel VI Seite 34; die Zeilen 2-12 des Beispiels 19 -----	16

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International Application No
PCT/EP 01/07990

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
WO 0014071	A	16-03-2000	DE	19840322 A1	09-03-2000
			AU	5970399 A	27-03-2000
			BR	9913383 A	22-05-2001
			WO	0014071 A2	16-03-2000
			EP	1161420 A2	12-12-2001

US 5763450	A	09-06-1998	AU	704911 B2	06-05-1999
			AU	4116196 A	17-06-1996
			BR	9509768 A	07-07-1998
			CN	1166831 A	03-12-1997
			CZ	9701575 A3	17-09-1997
			WO	9616046 A2	30-05-1996
			EP	0793656 A1	10-09-1997
			FI	972194 A	22-05-1997
			HU	77372 A2	30-03-1998
			JP	11507009 T	22-06-1999
			JP	3117721 B2	18-12-2000
			NO	972393 A	29-05-1997
			PL	320458 A1	29-09-1997
			TR	960499 A2	21-07-1996

WO 9200273	A	09-01-1992	IN	172842 A1	11-12-1993
			AT	111445 T	15-09-1994
			AU	637695 B2	03-06-1993
			AU	7639491 A	21-11-1991
			BG	61260 B1	30-04-1997
			CA	2041846 A1	18-11-1991
			CN	1072173 A ,B	19-05-1993
			CS	9101334 A3	19-02-1992
			DE	69104041 D1	20-10-1994
			DK	536151 T3	20-02-1995
			WO	9200273 A1	09-01-1992
			EP	0536151 A1	14-04-1993
			ES	2064103 T3	16-01-1995
			FI	925871 A ,B,	23-12-1992
			GB	2244486 A ,B	04-12-1991
			HR	930699 A1	30-06-1995
			HU	210200 B	28-02-1995
			IE	911439 A1	20-11-1991
			IL	98029 A	31-10-1995
			JP	8009589 B	31-01-1996
			MX	25770 A1	31-03-1994
			NO	179204 B	20-05-1996
			NZ	238119 A	27-07-1993
			PL	167657 B1	31-10-1995
			PT	97700 A ,B	28-02-1992
			RO	111764 B1	30-01-1997
			RU	2099323 C1	20-12-1997
			US	5302720 A	12-04-1994
			ZA	9103438 A	26-08-1992

PC., 01/07990

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 C07D231/16 A01N43/56 C07D401/12 C07C251/48 C07C251/52 C07D213/30 C07F5/02 C07C223/06 C07C225/22		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 7 C07D C07C C07F		
Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal, BEILSTEIN Data, WPI Data, CHEM ABS Data		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 00 14071 A (MAULER MACHNIK ASTRID ;KUGLER MARTIN (DE); STENZEL KLAUS (DE); BAY) 16. März 2000 (2000-03-16) in der Anmeldung erwähnt Seite 44 -Seite 51; Ansprüche 1-10 ---	1-8, 18-21
X	US 5 763 450 A (MASCIADRI RAFFAELLO ET AL) 9. Juni 1998 (1998-06-09) Spalte 17, Zeile 26 - Zeile 32 --- -/--	10,11
<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "I" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absenddatum des internationalen Recherchenberichts
12. Oktober 2001		14. 01. 02
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter Fink, D

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Intern. Aktenzeichen

PC., L., 01/07990

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DATABASE CROSSFIRE BEILSTEIN [Online] Beilstein Institut zur Förderung der Chemischen Wissenschaften, Frankfurt am Main, DE; die Verbindung mit der BRN: 3118739, XP002179759 & JOURNAL OF ORGANIC CHEMISTRY., Bd. 33, Nr. 12, 1968, Seiten 4483-4486, AMERICAN CHEMICAL SOCIETY. EASTON., US ISSN: 0022-3263 ---	10
X	WO 92 00273 A (BOOTS CO PLC) 9. Januar 1992 (1992-01-09) Seite 14; die Verbindungen der allgemeinen Formel VI Seite 34; die Zeilen 2-12 des Beispiels 19 -----	16

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichung

die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/JP 01/07990

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 0014071 A	16-03-2000	DE 19840322 A1	09-03-2000
		AU 5970399 A	27-03-2000
		BR 9913383 A	22-05-2001
		WO 0014071 A2	16-03-2000
		EP 1161420 A2	12-12-2001

US 5763450 A	09-06-1998	AU 704911 B2	06-05-1999
		AU 4116196 A	17-06-1996
		BR 9509768 A	07-07-1998
		CN 1166831 A	03-12-1997
		CZ 9701575 A3	17-09-1997
		WO 9616046 A2	30-05-1996
		EP 0793656 A1	10-09-1997
		FI 972194 A	22-05-1997
		HU 77372 A2	30-03-1998
		JP 11507009 T	22-06-1999
		JP 3117721 B2	18-12-2000
		NO 972393 A	29-05-1997
		PL 320458 A1	29-09-1997
		TR 960499 A2	21-07-1996

WO 9200273 A	09-01-1992	IN 172842 A1	11-12-1993
		AT 111445 T	15-09-1994
		AU 637695 B2	03-06-1993
		AU 7639491 A	21-11-1991
		BG 61260 B1	30-04-1997
		CA 2041846 A1	18-11-1991
		CN 1072173 A ,B	19-05-1993
		CS 9101334 A3	19-02-1992
		DE 69104041 D1	20-10-1994
		DK 536151 T3	20-02-1995
		WO 9200273 A1	09-01-1992
		EP 0536151 A1	14-04-1993
		ES 2064103 T3	16-01-1995
		FI 925871 A ,B,	23-12-1992
		GB 2244486 A ,B	04-12-1991
		HR 930699 A1	30-06-1995
		HU 210200 B	28-02-1995
		IE 911439 A1	20-11-1991
		IL 98029 A	31-10-1995
		JP 8009589 B	31-01-1996
		MX 25770 A1	31-03-1994
		NO 179204 B	20-05-1996
		NZ 238119 A	27-07-1993
		PL 167657 B1	31-10-1995
		PT 97700 A ,B	28-02-1992
		RO 111764 B1	30-01-1997
		RU 2099323 C1	20-12-1997
		US 5302720 A	12-04-1994
		ZA 9103438 A	26-08-1992

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

ationales Aktenzeichen
PCT/EP 01/07990

Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1. ☒ Ansprüche Nr.
weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich
Für die Ansprüche 19 und 20 - insoweit sie sich auf ein Verfahren zur Behandlung des menschlichen/tierischen Körpers beziehen - wurde ebenfalls eine Recherche durchgeführt die sich auf die angeführten Wirkungen der Verbindung/Zusammensetzung gründet.
2. ☐ Ansprüche Nr.
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
3. ☐ Ansprüche Nr.
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

siehe Zusatzblatt

1. ☐ Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
2. ☐ Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
3. ☐ Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.
4. ☒ Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:
1-11, 14-21

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

- ☐ Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.
- ☐ Die Zahlung zusätzlicher Recherchegebühren erfolgte ohne Widerspruch.

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere (Gruppen von) Erfindungen enthält, nämlich:

1. Ansprüche: 1-11, 14-21

die Pyrazolbiphenylcarboxamide der allgemeinen Formel (I) gemäß vorliegenden Ansprüchen 1-3 und 5-7, die Verfahren zu deren Herstellung gemäß vorliegendem Anspruch 4, diese enthaltende Mittel gemäß vorliegendem Anspruch 18, deren Verwendung (in einem Verfahren / in einem Verfahren zur Herstellung von Mitteln) zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen gemäß vorliegenden Ansprüchen 19 - 21, Zwischenprodukte zu deren Herstellung gemäß vorliegenden Ansprüchen 8, 10, 14 und 16 und die Verfahren zur Herstellung letztgenannter Zwischenprodukte gemäß vorliegenden Ansprüchen 9, 11, 15 und 17;

2. Ansprüche: 12, 13

die Zwischenprodukte gemäß vorliegendem Anspruch 12 und das Verfahren zur Herstellung dieser Zwischenprodukte gemäß vorliegendem Anspruch 13;